



Meh

KERNFORSCHUNGSANLAGE JÜLICH GmbH

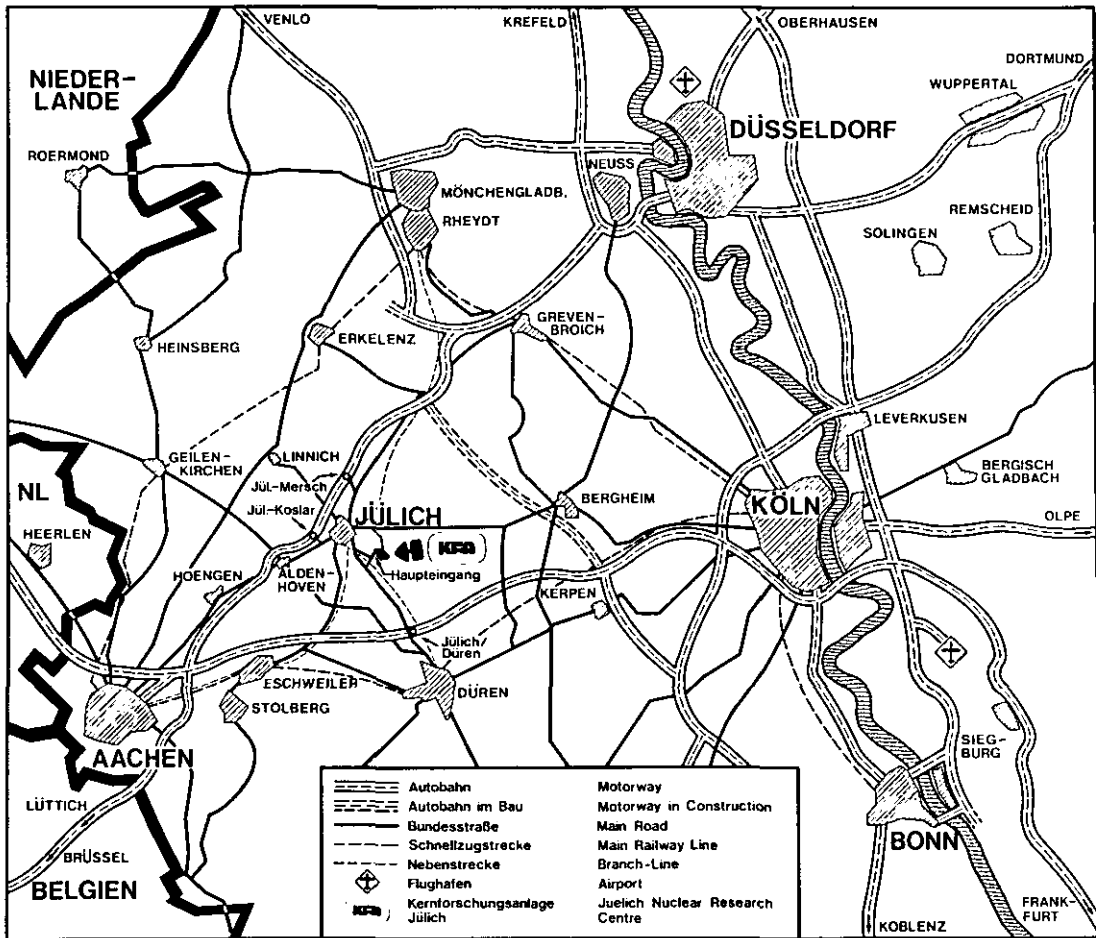
Institut für Chemische Technologie

**Aufbrechen der SiC-Beschichtung bestrahlter
UO₂-TRISO-Partikeln durch Prallbean-
spruchung in einer Strahlmühle**

von

K. Hartmann, H. Schmitz, H. Tischer

Jül-Spez-80
Juni 1980
ISSN 0343-07639



Als Manuskript gedruckt

Spezielle Berichte der Kernforschungsanlage Jülich - Nr. 80

Institut für Chemische Technologie Jüli - Spez - 80

Zu beziehen durch: ZENTRALBIBLIOTHEK der Kernforschungsanlage Jülich GmbH

Postfach 1913 · D-5170 Jülich (Bundesrepublik Deutschland)

Telefon: 02461/611 · Telex: 833556 kfa d



KERNFORSCHUNGSANLAGE JÜLICH

GESELLSCHAFT MIT BESCHRÄNKTER HAFTUNG

KFA Jülich GmbH · Postfach 1913 · D-5170 Jülich 1

Herrn
Dr. A.W. Mehner

Ihre Nachricht vom/Zeichen

Bei Beantwortung bitte angeben

Telefon-Durchwahl

JÜLICH 15.9.80

(02461) 61 6450

Telefongespräch am: 15.9.80

mit: Ihnen

Ohne besonderes Anschreiben erhalten Sie die Anlage

Fach-Spez - 80, Juni 1980

mit der Bitte um:

- | | | |
|--|--|--|
| <input type="checkbox"/> Kenntnisnahme | <input type="checkbox"/> Erledigung | <input type="checkbox"/> Weitergabe an |
| <input type="checkbox"/> Überprüfung | <input type="checkbox"/> Bescheinigung | <input type="checkbox"/> |
| <input type="checkbox"/> Stellungnahme | <input type="checkbox"/> Verrechnung | <input type="checkbox"/> |
| <input type="checkbox"/> Rücksprache | <input type="checkbox"/> Rückgabe | <input type="checkbox"/> |
| <input type="checkbox"/> Veranlassung | <input checked="" type="checkbox"/> Verbleib | <input type="checkbox"/> |
| <input type="checkbox"/> weitere Bearbeitung | <input type="checkbox"/> siehe Rückseite | <input type="checkbox"/> |

Mit freundlichem Gruß

A. Kerschbaum
(Unterschrift)

Kommentare lesen
sind wieder andächtig.
Selig sind die, denen sie fürste!

Red

Aufbrechen der SiC-Beschichtung bestrahlter UO₂-TRISO-Partikeln durch Prallbean- spruchung in einer Strahlmühle

von

K. Hartmann, H. Schmitz, H. Tischer

INHALTSVERZEICHNIS

	Seite
1. EINLEITUNG UND AUFGABENSTELLUNG	1
1.1 Brennstoffkonzepte für Hochtemperaturreaktoren	1
1.2 Allgemeine Forderung an die Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen	2
1.3 Auswirkungen des Feed-Breed-Brennstoffkonzeptes und der SiC-Beschichtung der Partikeln auf das Head-End der Wiederaufarbeitung	3
1.4 Aufgabenstellung	6
2. BESCHREIBUNG DES VERSUCHSGUTES	6
2.1 Abbrennen der äußersten PyC-Schicht der bestrahlten UO_2 -TRISO-Partikeln	6
2.2 Physikalische und mechanische Größen der Versuchs-Partikeln	7
3. THEORIE DER PRALLZERKLEINERUNG	13
3.1 Energieausnutzung beim Stoß	14
3.1.1 Gerader zentraler Stoß	14
3.1.2 Schiefer Stoß auf eine feste Wand	16
4. VERSUCHSAUFBAU UND -DURCHFÜHRUNG	18
4.1 Die Luftstrahlmühle	18
4.1.1 Beschreibung des Verfahrens	18
4.1.2 Versuchsergebnisse mit Erläuterungen	20
4.2 Die Prallmühle	22
4.2.1 Beschreibung des Verfahrens	22
4.2.2 Versuchsergebnisse mit Erläuterungen	23
5. GRAPHISCHE DARSTELLUNG DER ERGEBNISSE	32
6. DISKUSSION DER ERGEBNISSE	34
7. ZUSAMMENFASSUNG	41
8. NOMENKLATUR	43
9. LITERATURVERZEICHNIS	45

1. EINLEITUNG UND AUFGABENSTELLUNG

1.1 Brennstoffkonzepte für Hochtemperaturreaktoren

Für Hochtemperaturreaktoren (HTR) sind zwei Brennelementtypen entwickelt worden und zwar in der Bundesrepublik Deutschland das Kugelbrennelement mit einem Durchmesser von $D = 60 \text{ mm}$ und in den USA das Blockbrennelement (Schlüsselweite $S = 360 \text{ mm}$ und Höhe $H = 800 \text{ mm}$) [1]. Beiden Brennelementtypen gemeinsam ist die Form, in der der Brennstoff in den Brennelementen eingebracht ist. Man spricht von sogenannten "beschichteten Teilchen" (coated particles), d. h. der Brennstoffkern ist mit mehreren Schichten verschiedener Dichte und Dicke umhüllt. Die coated particles haben einen Durchmesser von $0,4 - 0,6 \text{ mm}$; ca. 33.000 solcher Brennstoffteilchen befinden sich in einem Kugelbrennelement.

Für die Art der Beschichtung des Brennstoffkernes gibt es zwei bereits weitgehend erprobte Möglichkeiten. Das wohl aussichtsreichste Konzept sieht eine vierfache Beschichtung (TRISO-genannt) vor (Abb. 1):

- zwei innere Beschichtungen aus Kohlenstoff,
- eine aus Siliziumcarbid (SiC) und
- eine äußere Schicht aus Pyrokohlenstoff.

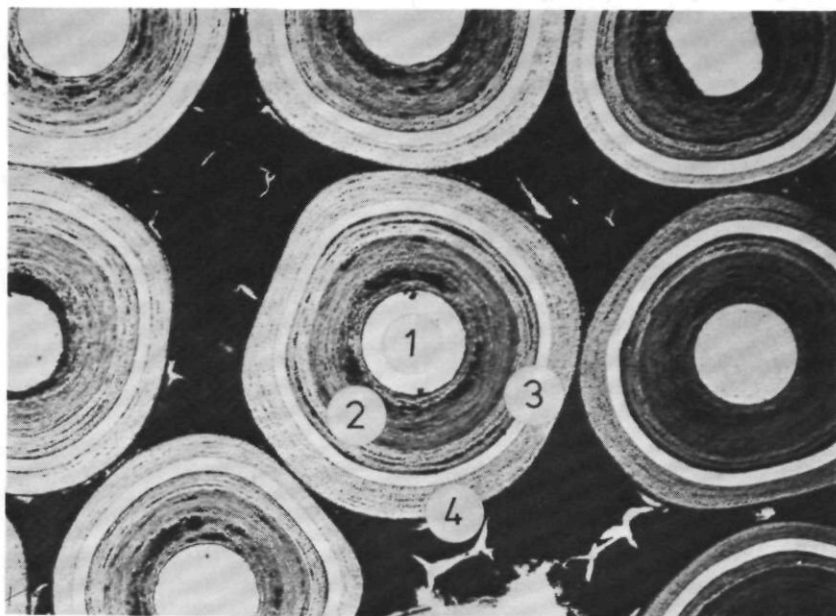


Abb. 1: Schnitt durch TRISO-beschichtete Brennstoffteilchen
der Sorte EO 561/567 t [13] (100:1)

- 1 Brennstoffkern
- 2 innere Kohlenstoffbeschichtung
- 3 SiC-Schicht
- 4 äußere Pyrokohlenstoffbeschichtung

Werden die Hochtemperaturreaktoren im Thorium/Uran-Brennstoffkreislauf betrieben, diskutiert man zwei Varianten der Brennelementbeladung:

1. Brennelemente mit nur einer Art von coated particles, den Mischoxidpartikeln, wobei es sich um beschichtete $(U/Th)O_2$ -Kerne handelt.
2. Brennelemente mit zwei Arten von coated particles und zwar den
 - Feed-Partikeln, die in ihrem Kern nur Spaltstoff in Form von UC_2 oder UO_2 und den
 - Breed-Partikeln, die nur den Brutstoff in Form von ThO_2 enthalten.

Die erste Variante ist unter dem Namen Mischoxid-, die zweite unter dem Namen Feed-Breed-Konzept bekannt.

Im folgenden Bericht wird eine spezielle Behandlung von TRISO-beschichteten Feed-Partikeln mit UO_2 -Kern in der Eingangsstufe (Head-End) einer Wiederaufarbeitungsanlage (WAA) beschrieben. Die Ergebnisse und Aussagen hierzu lassen auch Rückschlüsse auf die Head-End-Behandlung für ein neuerdings stark diskutiertes Brennstoffkonzept zu, das eine Einkopplung der Hochtemperaturreaktoren in den Uran/Plutonium-Brennstoffkreislauf vorsieht [13]. Die Beladung der Brennelemente besteht in diesem Fall aus TRISO-beschichteten Partikeln mit einem Schwermetall-Kern aus niedrig angereichertem Uran. Man spricht vom LEU-Konzept (LEU = low enriched uranium).

1.2 Allgemeine Forderung an die Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen

Die Reaktorbrennelemente verweilen etwa 2-3 Jahre im Reaktorkern; wenn sie den Reaktor verlassen, hat sich ihre Zusammensetzung wesentlich verändert. Aus dem ursprünglich vorhandenen

Zweikomponentengemisch UO_2 (UC_2)- ThO_2 ist ein Vielelementgemisch geworden, das außer den noch verbliebenen Ausgangselementen Uran und Thorium das ganze Spektrum der Spaltprodukte und Aktinidenelemente enthält [1].

Aufgabe des Brennstoffkreislaufschrilles "Wiederaufarbeitung" ist es nun, dieses Vielelementgemisch durch mechanische und chemische Verfahren in drei Faktoren aufzutrennen:

- den Spaltstoff
- den Brutstoff
- die radioaktiven Abfallstoffe

An die einzelnen Verfahrensschritte werden dabei folgende Forderungen gestellt:

- Brut- und Spaltstoff müssen sauber und vollständig von den strahlenden und neutronenschluckenden Spaltprodukten abgetrennt werden (Trennfaktor mindestens 10^5).
- Weitere Auftrennung in Spalt- und Brutstoff-Fraktion mit Ausbeuten von mindestens 98-99 %.
- Die Wiederaufarbeitung muß in möglichst wenigen, technisch einfachen Verfahrensschritten geschehen, da das Material sehr intensiv strahlend und nur unter starken Betonabschirmungen (Heißen Zellen) zu handhaben ist. Dabei müssen die Prozeßeinrichtungen sehr zuverlässig und möglichst wartungsfrei arbeiten, da Eingriffe in die Anlagen nur mit fernbedienten Werkzeugen (Manipulatoren) möglich sind.

1.3 Auswirkungen des Feed-Breed-Brennstoffkonzeptes und der SiC-Beschichtung der Partikeln auf das Head-End der Wiederaufarbeitung

In der Eingangsstufe (Head-End) der Wiederaufarbeitung für abgebrannte Hochtemperaturreaktorbrennelemente wird beim HTR-Brennstoffkonzept "Feed-Breed" nach der Zerkleinerung des Brennelements und der Abtrennung des BE-Matrix-Graphits und PyC vom Kernbrennstoff durch Wirbelschichtverbrennung [3]

ein weiterer Separationsschritt sowie ein mechanisches Verfahren zum Aufbrechen der Beschichtungen erforderlich, wenn die Schwermetall-(SM)-Partikeln mit SiC beschichtet sind. Die Feed-Partikeln enthalten den unverbrauchten Spaltstoffrest an U-235, das Zielprodukt der Wiederaufarbeitung sowie den durch Neutronen-(n)-Einfangreaktionen entstandenen, als Neutronenabsorber auftretenden U-236-Anteil und den Hauptteil der bei der Kernspaltung entstandenen hochradioaktiven Spaltprodukte. Die in dem Verbrennungsprodukt des Wirbelschichtreaktors enthaltenen Breed-Partikeln müssen wegen des Neutronenabsorbers U-236 von den Feed-Partikeln quantitativ getrennt werden. Nach der Feed-Breed-Trennung werden die TRISO-beschichteten Feed-Partikeln der mechanischen Zerkleinerung unterworfen (Abb. 2), um die chemisch inerten SiC-Beschichtungen aufzubrechen und die Feed-Kerne von der Restbeschichtung PyC durch die sogenannte Nachverbrennung zu trennen.

1.4 Aufgabenstellung

Nach den zufriedenstellenden Ergebnissen, die die Versuche zum Aufbrechen der SiC-Beschichtung von unbestrahlten Partikeln mit der Partikelstrahlmühle gezeigt haben [7], sollte mit dieser Arbeit untersucht werden, ob ähnlich gute Ergebnisse (hohe Hüllbruchrate bei geringem Kernbruchanteil) mit bestrahlten UO_2 -TRISO-Partikeln unter Anwendung desselben Verfahrens in der Heißen Zelle erreicht werden.

Außerdem sollten die Versuche ganz allgemein Aufschluß über das Bruchverhalten bestrahlter Brennstoffpartikeln geben.

Voraussetzungen für einen Vergleich der Ergebnisse aus den heißen und kalten Versuchen sind:

1. gleiche Versuchsbedingungen,
2. gleich große Abmessungen und Dichte der bestrahlten und unbestrahlten Versuchspartikeln.

2. BESCHREIBUNG DES VERSUCHSGUTES

2.1 Abbrennen der äußersten PyC-Schicht der bestrahlten UO_2 -TRISO-Partikeln

Für die Prallversuche standen bestrahlte Kugelbrennelemente mit einem (U/Th)-Verhältnis von 1:10 aus dem Bestrahlungsexperiment BE-24 zur Verfügung. Die Bestrahlung erfolgte im Forschungsreaktor MERLIN zwischen dem 21.2.74 und dem 23.12.74. Die Bestrahlungsdauer betrug 237 Tage, wobei ein Abbrand von 41 % fifa erreicht wurde. Die Brennelemente enthielten Feed- und Breed-Partikeln, deren Spezifikationen der folgenden Tabelle 1 zu entnehmen sind.

Die Kugelbrennelemente wurden einzeln in einem Quarzgefäß im Tiegelofen bei $820^\circ\text{C} \pm 15^\circ\text{C}$ verbrannt [4]. Als Brenngas wurde reiner Sauerstoff verwendet. Pro Kugel waren ca. 15 g Asche zu erwarten, wenn die äußere PyC-Schicht der Feed-Partikeln und die beiden PyC-Schichten der Breed-Partikeln vollständig abgebrannt sind.

Die Verbrennungsversuche ergaben im Durchschnitt ein Asche-

Kern	Feed UO ₂	Breed ThO ₂
Kerndurchmesser:	177 - 250 µm	500 - 630 µm
Schichtdicke:		
Buffer:	67/113 µm	49/151 µm
1. PyC:	19/ 45 µm	47/115 µm
SiC:	28/ 28 µm	-
2. PyC:	22/ 58 µm	-
Dichte:		
Kerne:	10,77 g/cm ³	9,94 g/cm ³
Buffer:	≤ 1,2 g/cm ³	≤ 1,2 g/cm ³
1. PyC:	1,8 - 2,0 g/cm ³	1,93 g/cm ³
SiC:	3,18 g/cm ³	-
2. PyC:	1,91 g/cm ³	-

Tab. 1: Spezifikationen der in HZ untersuchten Schwermetall-Partikeln

gewicht von 15,2 g ± 0,1 g pro Kugel, so daß man annehmen konnte, daß auch die äußersten PyC-Schichten der Partikeln abgebrannt worden sind.

2.2 Physikalische und mechanische Größen der Versuchs-Partikeln

In Tabelle 2 sind alle Partikelgrößen und -eigenschaften aufgeführt. Auf der Basis der nach DIN 50 049 vorgeschriebenen und der in Tabelle 1 angegebenen

- Schichtdicken S
- Kern- und Schichtdichten ρ sowie
- Kerndurchmessern d

wurden die übrigen mechanischen Größen berechnet.

*Die Dichte
Kerne wissen
mindestens
was DIN
50049 ist*

*peinlich, ,
peinlich .*

Mechanische und physikalische Größen	Dimension	UO ₂ -TRISO-Partikel		ThO ₂ -BISO-Partikel	
		min.	mittel max.	min.	mittel max.
I. Schichtdicken S	[µm]				
1. Buffer-Schicht S ₁	"	67	123 113	49	100 151
2. PyC-Schicht S ₂	"	19	32 45	47	81 115
3. SiC-Schicht S ₃	"	28	28 28		
4. PyC-Schicht S ₄	"	22	40 58		
II. Dichten ρ	[g/cm ³]				
5. Kern ρ ₁	"		10,77		9,94
6. Buffer-Schicht ρ ₂	"		1,2		1,2
7. PyC-Schicht ρ ₃	"	1,8	1,9 2,0		1,93
8. SiC-Schicht ρ ₄	"		3,18		
9. PyC-Schicht ρ _p	"		1,91		
10. Partikel ρ _{po}	"	2,48	1,85 2,29		
11. der abgebrannten Partikel	"	2,84	2,59 2,55		

Tab. 2: Schichtdicken s und Dichten ρ der Partikeln und Beschichtungen (minimale, mittlere und maximale Werte)

Mechanische und physikalische Größen	Dimension	UO ₂ -TRISO-Partikel		ThO ₂ -BISO-Partikel	
		min.	mittel max.	min.	mittel max.
III. Durchmesser $\frac{d}{\text{(bzw. Außendurchmesser)}}$	[μm]				
12. Kern d_K		177	200 250	500	565 630
13. Buffer-Schicht d_1		311	380 476	598	765 930
14. PyC-Schicht d_2		349	444 566	692	927 1160
15. SiC-Schicht d_3		405	500 622		
16. PyC-Schicht d_4		449	602 738		
IV. Volumen $\frac{V}{\text{[10}^{-6} \cdot \text{cm}^3\text{]}}$	[$10^{-6} \cdot \text{cm}^3$]				
17. Kern V_K		2,90	4,19 8,18	65,45	94,43 130,9
18. Buffer-Schicht V_1		12,8	24,5 48,3	46,5	140,0 290,2
19. PyC-Schicht V_2		6,50	17,1 38,5	61,5	182,7 396,0
20. SiC-Schicht V_3		12,53	19,65 31,0		
21. PyC-Schicht V_4		12,6	48,7 84,4		
22. Partikel V_P		47,4	114,2 210,5	173,5	417,1 817,3
23. der abgebrannten Partikel V_{Po}		34,78	65,4 126,0		

Fortsetzung Tabelle 2: Durchmesser d und Volumina V der Partikeln und Beschichtungen

Mechanische und physikalische Größen	Dimension	UO ₂ -TRISO-Partikel		ThO ₂ -BISO-Partikel	
		min.	mittel max.	min.	mittel max.
V. Massen	[10 ⁻⁶ ·g]				
24. Kern		31,2	45,11	88,1	650,6 938,0 1301,0
25. Buffer-Schicht		15,4	29,44	57,9	55,8 168 348
26. PyC-Schicht		12,3	32,55	77,0	118,6 352,6 712
27. SiC-Schicht		39,8	62,44	98,6	
28. PyC-Schicht		19,0	42,3	161,2	
29. Partikel		117,7	212,0	483,0	825 1458,6 2361
30. der abgebrannten Partikel		98,7	169,5	321,6	

Fortsetzung Tabelle 2: Massen m der Partikeln und Beschichtungen

Mechanische und physikalische Größen	Dimension	UO ₂ -TRISO-Partikel			ThO ₂ -BISO-Partikel		
		min.	mittel	max.	min.	mittel	max.
VI. Kernvolumen Partikelnvolumen	$\frac{V_K}{V_P} \cdot 100$ [%]	6	3,6	3,8	37,7	22,6	16
VII. Kernvolumen Partikelnvolumen	$\frac{V_K}{V_{Po}} \cdot 100$ [%]	8,3	6,4	6,5			
VIII. Kernmasse Partikelnmasse	$\frac{m_K}{m_P} \cdot 100$ [%]	26,5	21,3	18,2	78,8	64,3	55,1
IX. Kernmasse Partikelnmasse	$\frac{m_K}{m_{Po}} \cdot 100$ [%]	31,6	26,6	27,4			
X. Kernmasse Beschichtungsmasse	$\frac{m_K}{m_P - m_K} \cdot 100$ [%]	36,1	27,0	22,3	373	180	122
XI. Kernmasse Beschichtungsmasse	$\frac{m_K}{m_{Po} - m_K} \cdot 100$ [%]	46,2	36,3	37,7			

Fortsetzung Tabelle 2: Volumina- und Massenverhältnisse

Abg.: kleiner Einwirkungs
raum an sich!

deutliches Sprake schwarzes Sprake⁻¹²⁻

Die Masse einer beschichteten Partikel ergibt sich demnach zu:

$$m_P = \frac{\pi}{6} \cdot [\rho_K \cdot d_K^3 + \rho_1 \cdot (d_1^3 - d_K^3) + \rho_2 \cdot (d_2^3 - d_1^3) + \rho_3 \cdot (d_3^3 - d_2^3) + \rho_4 \cdot (d_4^3 - d_3^3)] \quad (1)$$

Hierzu bedeuten:

ρ = Dichte [g/cm³]

d = Außendurchmesser der einzelnen Schichten [cm]

und die Indizes:

K = Kern; 1: Buffer-Schicht, 2: PyC-Schicht,
3: SiC-Schicht, 4: PyC-Schicht

P = beschichtete Partikel

P_O = beschichtete Partikel ohne äußerster
PyC-Schicht (abgebrannt)

ρ_P = mittlere Dichte der beschichteten Partikel

$$\frac{m_P}{V_P} \quad \text{mit } V_P = \frac{\pi}{6} \cdot d_4^3$$

u. d. Karl Valentins

Semmeln knödeln

In Tabelle 2 sind für die in Tab. 1 angegebenen Partikelnspezi-
fikationen - kleinste, mittlere und größte Werte der Schicht-
dicken S, Durchmesser d und Schichtdicken ρ - die entsprechenden
Partikelmassen bestimmt, innerhalb derer die Partikelstrahl-
mühle arbeiten muß.

Um auf der sicheren Seite zu liegen, wurde die theoretisch
minimale Partikelmasse $m_{P_{\min}}$ bzw. $m_{P_{O_{\min}}}$ aus der Summe der
Produkte der niedrigsten Dichten ρ_{\min} und kleinsten Durchmessern
 d_{\min} gebildet. Bei der Berechnung der mittleren und maximalen
Partikelmasse wurde entsprechend verfahren.

Demnach liegen die Massen der in den heißen Versuchen verwendeten
UO₂-TRISO-Partikeln in dem nach DIN 50 049 zulässigen Toleranz-
bereich von $449 \mu\text{m} \leq d_P \leq 738 \mu\text{m}$ bzw. wenn die äußerste PyC-
Schicht abgebrannt ist, im Bereich von $405 \mu\text{m} \leq d_{P_O} \leq 622 \mu\text{m}$.
Daraus ergeben sich für die entsprechenden Partikelmassen
folgende Größenbereiche: $117 \cdot 10^{-6} \text{ g} \leq m_P \leq 483 \cdot 10^{-6} \text{ g}$ bzw.
 $98,7 \cdot 10^{-6} \text{ g} \leq m_{P_O} \leq 321,6 \cdot 10^{-6} \text{ g}$.

3. THEORIE DER PRALLZERKLEINERUNG

Das verfahrenstechnische Ziel der Zerkleinerung hängt von den nachfolgenden Verfahrensstufen oder vom Verwendungszweck der Zerkleinerungsprodukte ab. In dem hier betrachteten Fall haben wir es mit dem Aufschließen des Wertstoffes, dem UO_2 -Kern, durch Prallbeanspruchung zu tun.

Beim Prall treffen frei bewegliche Körner mit hoher Geschwindigkeit auf ein Prallelement oder aufeinander. Bei den Stoßvorgängen wird ein Teil der kinetischen Energie, die ein Korn relativ zum Prallelement oder einem anderen Korn besitzt, für die Zerkleinerung zur Verfügung gestellt. Seine Größe hängt von der Stoßgeometrie und Stoßpartnerschaft ab. Dieser Energiebetrag wird nur dann günstig für die Zerkleinerung genutzt, wenn er zum Spröbruch führt. Spannungen und Spannungsverteilung hängen vor allem von der Aufprallgeschwindigkeit, den elastischen Eigenschaften und der Form des Kornes ab. Beim Einstellen von Prallzerkleinerungsmaschinen ist die richtige Anpassung der Prallgeschwindigkeit an die Kornfestigkeit wichtig. Größere Körner besitzen eine geringere Festigkeit. Deshalb liegen die Prallgeschwindigkeiten für die Grob- und Mittelzerkleinerung im allgemeinen im Bereich von 20 bis 60 m/s. Für die Feinzerkleinerung sind wesentlich höhere Geschwindigkeiten von 200-300 m/s notwendig, wobei ein Trägergasdruck von 5-15 kp/cm^2 notwendig wird [5].

Dieses Prinzip der Prallzerkleinerung findet in sogenannten Strahlmühlen Anwendung. Das Aufgabegut $\{0,1 \leq d_K \leq 1 \text{ mm}\}$ wird von expandierenden Gasen (Luft) mit hoher Geschwindigkeit transportiert und durch Prall- und Abriebwirkung beansprucht, indem die Teilchen gegeneinander oder an die Wände des Mahlraumes stoßen. In Abhängigkeit von der Prallenergie und der Stoßpartnerschaft kommt es dabei vom Zertrümmern bis zum Abreiben. Das Trägermedium tritt aus Düsen mit hoher Geschwindigkeit in den Mahlraum ein. Vorteilhaft bei dieser Mühlenart ist der Wegfall routierender Teile. Das aus dem Mahlraum ausgetragene Feinstkorn wird im nachgeschalteten Zyklon abgeschieden.

3.1 Energieausnutzung beim Stoß

Die Prallbeanspruchung folgt den Gesetzen des Stoßes. Es interessiert die Frage nach der maximal möglichen Energieausnutzung, also demjenigen Anteil der vor dem Stoß verfügbaren Energie, der in Verformungsenergie des zu beanspruchenden Körpers umgesetzt und damit zur Zerkleinerung genutzt werden kann.

Für die Prallmöglichkeiten der kugelförmigen Brennstoffpartikeln in einer Prallmühle sind 2 Stoßarten besonders charakteristisch, die im folgenden erläutert werden [6].

3.1.1 Gerader zentraler Stoß

Die beiden Massen m_1 und m_2 bewegen sich rein translatorisch mit den Geschwindigkeiten v_1 und v_2 und der Relativgeschwindigkeit $v_1 - v_2$ in der gleichen Richtung, vgl. Abb. 3. Die Bewegungsrichtung der Schwerpunkte fällt mit der Stoßnormale zusammen. Am Ende der 1. Stoßperiode haben beide Körper die gleiche Geschwindigkeit

$$u = \frac{m_1 v_1 + m_2 v_2}{m_1 + m_2} \quad (2)$$

und ihre gemeinsame kinetische Energie ist um den Betrag

$$E = \frac{m_1 \cdot m_2}{m_1 + m_2} \cdot \frac{(v_1 - v_2)^2}{2} \quad (3)$$

kleiner als die Summe der kinetischen Energien beider Körper vor dem Stoß. Dieser Energiebetrag wird nach der zugrunde gelegten klassischen Theorie als Formänderungsarbeit in beiden Körpern aufgebaut und steht zur Zerkleinerung beider Körper zur Verfügung. Der Beanspruchungsfall a in Abb. 3 kann eintreffen, wenn zwei Gutteilchen aufeinander prallen.

Die wirkliche Stoßausbreitung beim Zusammenprall verschieden großer Körper gleicher Stoffart baut einen kleineren Betrag an Formänderungsarbeit auf. Er gleicht etwa dem Arbeitsbetrag, der beim Stoß gleich großer Körper $m_1 = m_2 = m$ ange-

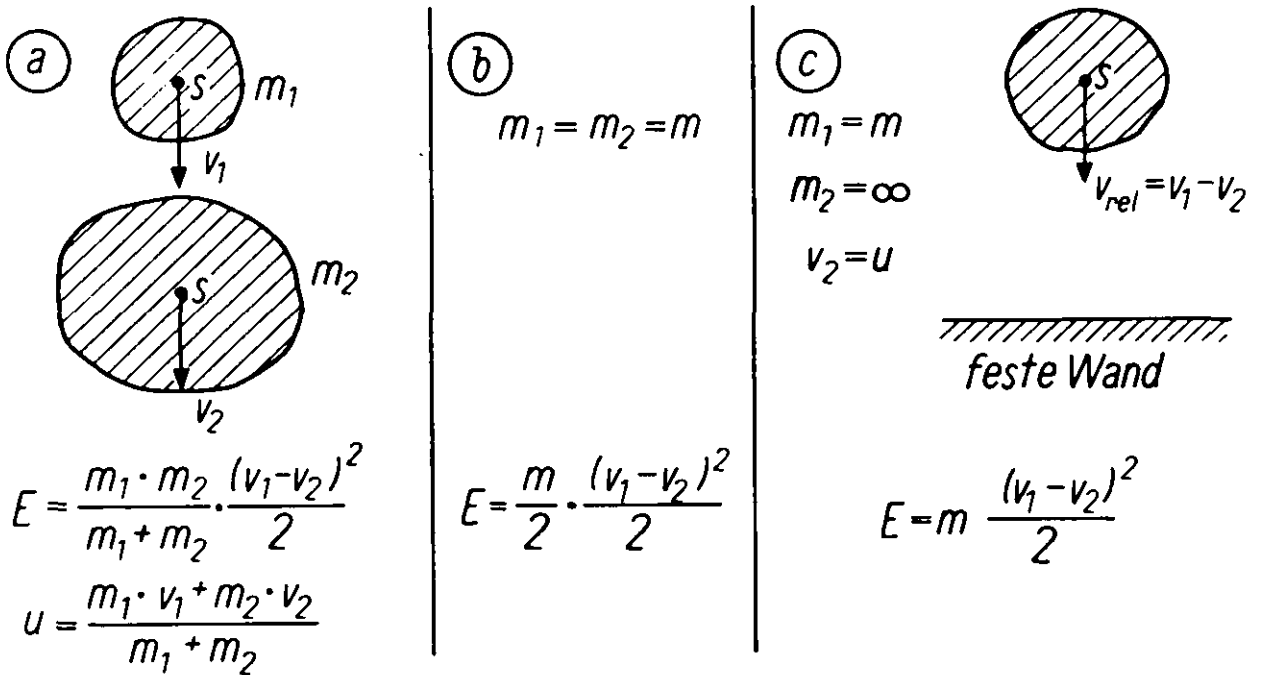


Abb. 3: Gerader zentraler Stoß

liefert wird (Fall b in Abb. 3), wodurch Gl. (3) übergeht in

$$E = \frac{m_1}{2} \cdot \frac{(v_1 - v_2)^2}{2} \quad (4)$$

Dieser Wert ist im Verhältnis

$$\zeta = \frac{m_1 + m_2}{2m_2} = \frac{1}{2} \left(1 + \frac{m_1}{m_2}\right) \quad (5)$$

kleiner als der Wert für E nach Gl. (3).

Wir wollen ζ als Energieaustauschzahl einführen und darunter das Verhältnis der ausgetauschten Energie zu der bei günstigster Stoß-Bedingung maximal austauschbaren Energie verstehen. ^{Wobei dann das Fließende die Mühle über Fall a + b ??}
 Der Aufprall auf die Prallflächen in der Mühle entspricht meistens dem Fall c in Abb. 3. Auch beim Aufprall auf bewegte Mahlgorgane kann deren Masse groß gegenüber der Masse des aufprallenden Teilchens angesetzt werden, wenn die Mahlgorgane fest mit dem Rotor verbunden sind und dieser ein hinreichend großes Schwungmoment besitzt.

3.1.2 Schiefer Stoß auf eine feste Wand

Im allgemeinen bewegen sich die Körperoberflächen unmittelbar vor der Stoßberührung nicht entgegengesetzt zueinander in Richtung der Stoßnormale, sondern sie haben auch eine Bewegungskomponente senkrecht zur Stoßnormale. Es erfolgt dann ein "schiefer Stoß", Abb. 4. Er ist immer mit einer Reibung in Richtung der Berührungsfläche verbunden. Ist die Geschwindigkeitsdifferenz beider Körper senkrecht zur Stoßnormale klein und der Stoßdruck groß, so genügt die Reibungskraft, um die Gleitung zu verhindern. Es geht dann keine Energie in Reibungsarbeit verloren. Bei größeren Tangentialgeschwindigkeiten gleiten die Stoßflächen aufeinander.

Der schiefe Stoß entsteht bei schräg zur Stoßnormale verlaufender translatorischer Bewegung (Fall b_1 in Abb. 4) oder bei Rotation der Körper (Fall b_2 in Abb. 4). Die räumlichen Bewegungsmöglichkeiten sind vielfältig. Der einfacheren Übersicht halber ist in

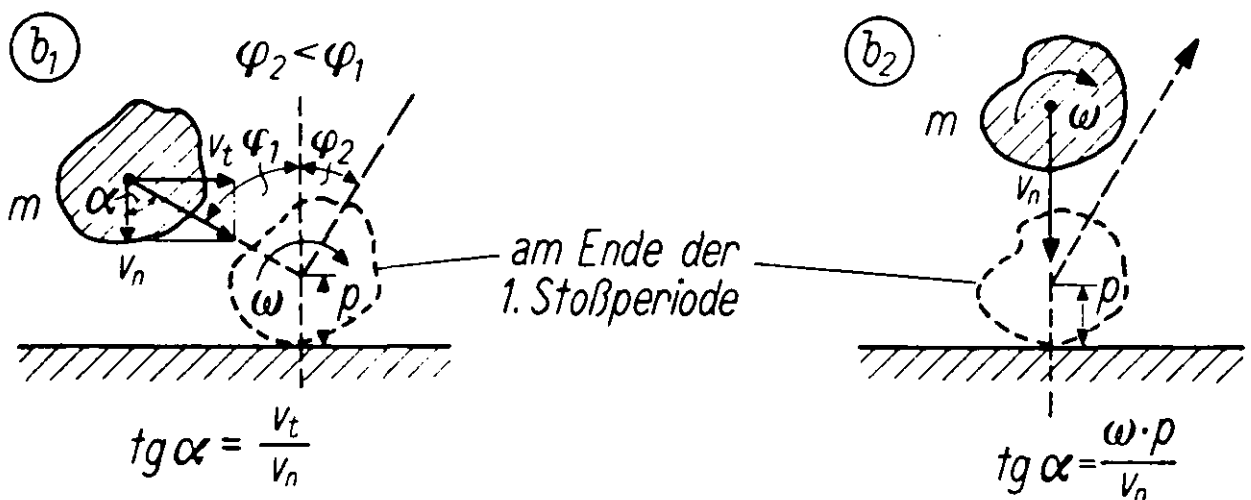


Abb. 4: Schiefer Stoß auf eine feste Wand

Abb. 4 ein Stoß auf eine feste Wand dargestellt, bei dem die Schwerpunktsgeschwindigkeit senkrecht zur Wand in der Stoßnormale liegt. Der Körper gleitet an der Wand, solange

$$\operatorname{tg} \alpha \geq \mu \frac{i^2 + p^2}{i^2} \quad (6)$$

ist; $i^2 = I/m$. (Bezeichnungen siehe Abb. 4).

Die in der 1. Stoßperiode ausgetauschte Energie ist dann

$$E = \frac{1}{2} m \cdot v_n^2 + A_R, \text{ wobei} \quad (7)$$

$$A_R = \frac{1}{2} m \cdot v_n^2 \left(2 \mu \operatorname{tg} \alpha - \mu^2 \cdot \frac{i^2 + p^2}{i^2} \right) \quad (8)$$

die beim Gleiten aufgebrauchte Reibungsarbeit angibt. Die Beanspruchung des Körpers setzt sich also aus zwei Teilen zusammen, der Formänderungsarbeit des mit der Vertikalkomponente der Aufprallgeschwindigkeit erfolgenden geraden zentralen Stoßes und einer Reibungsbeanspruchung.

Bei der Kugel ist $p = r$; $i^2 = \frac{2}{5} r^2$ und $\frac{i^2 + p^2}{i^2} = 3,5$. Man erhält dann die in der Tabelle 3 angegebenen Werte, wenn $\mu = 0,14$ und $\mu = 0,2$ angenommen werden.

$\mu =$ Gleiten bei $\alpha >$ α	0,14 27°	0,20 35°
45°	0,21	0,26
60°	0,41	0,55

Tab. 3: Verhältnis der Reibungsarbeit A_R zur Formänderungsarbeit $\frac{1}{2} m v_n^2$ beim schrägen Stoß von Kugeln auf eine feste Wand

Bei $\alpha = 60^\circ$ beträgt die Reibungsarbeit 55 % des Energieumsatzes des zentralen Stoßes der Vertikalbewegung. Da der schiefe Stoß wesentlich häufiger vorkommen dürfte als der gerade Stoß, erkennt man die Berechtigung der anfangs geäußerten Behauptung, daß die

→ woher dann die Theorie des geraden Stoßes? Sie ist hinderlich!

Prallzerkleinerung stets mit Reibung verbunden ist.

Fallen die Stoßnormale und die lotrechte Schwerpunktsbewegung nicht zusammen, so tritt an die Stelle des zentralen Stoßes mit der Normalkomponente v_n der exzentrische gerade Stoß. Der Energieumsatz des geraden Stoßes wird entsprechend reduziert. Oft wird der Körper infolge der ihm erteilten Drehung ein zweites Mal aufprallen und damit einen Teil der Rotationsenergie noch in Formänderungsarbeit umwandeln.

Hat ein Körper beispielsweise durch einen schiefen Stoß eine Rotation erhalten und prallt anschließend senkrecht gegen eine Wand, so wird, sofern der Vertikalstoß zentral ist, seine Translationsenergie voll genützt und zusätzlich ein Teil der Rotationsenergie in Reibungsarbeit umgewandelt und damit zu erhöhter Beanspruchung verwendet (Fall b_2 in Abb. 4).

4. VERSUCHSAUFBAU UND -DURCHFÜHRUNG

Insgesamt wurden zwei Versuchsreihen gefahren. In den ersten beiden Versuchen wurde eine Luftstrahlmühle (Jet Grinder), wie in Abb. 5 dargestellt, eingesetzt.

P.S.: Das was Meike wir schon seit Jahren bei THTR!

4.1 Luftstrahlmühle

4.1.1 Beschreibung des Verfahrens

Die Partikelzerkleinerung nach dem Prinzip des Jet-Grinding funktioniert folgendermaßen:

Nach dem Einfüllen der Versuchsmenge in den Wirbelschachtzylinder werden die Partikeln von unten mit Druckluft angeströmt, bis der Lockerungspunkt der Wirbelschicht erreicht ist. Die Strahldüse ist senkrecht auf die Prallplatte gerichtet. Der Luftstrahl, der aus der Düse austritt, reißt auf dem Weg bis zur Prallplatte Partikeln mit sich, deren Beschichtungen beim Aufprall auf die Prallwand, die Behälterwand oder beim Zusammenprall mit anderen Partikeln von den Kernen abplatzen.

Die im Verhältnis zu den SM-Kernen leichten TRISO-Beschichtungen werden aus dem Wirbelschacht ausgetragen und über einen Zyklon

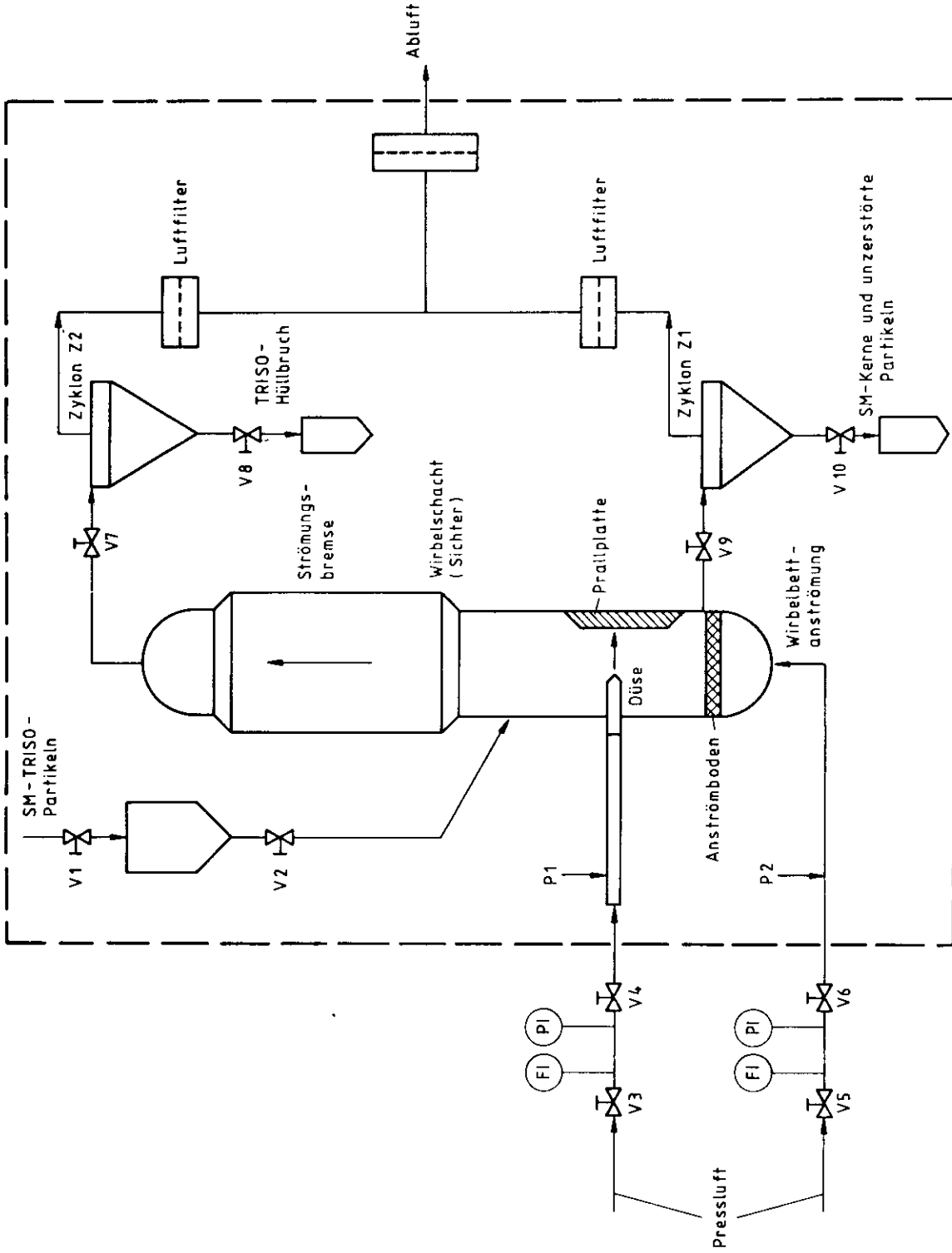


Abb. 5: Versuchsaufbau der Luftstrahlmühle (Jet Grinding) in der Heißen Zelle

in einen Sammelbehälter aus der Abluft ausgeschieden.

Die SM-Kerne und unzerstörten Partikeln sammeln sich über dem Anströmboden an und können nach Versuchsende aus dem Glaszylinder herausgenommen werden.

Problematisch bei der Verwendung einer Luftstrahlmühle ist die Erzeugung und Aufrechterhaltung eines Düsenstrahls der den Partikeln auf dem kurzen Weg vom Düsenaustritt bis zur Prallwand die zum Aufbrechen der Beschichtungen notwendigen Geschwindigkeitsenergie verleiht [7].

4.1.2 Versuchsergebnisse mit Erläuterungen

In Tabelle 4 sind alle Versuchsbedingungen und Ergebnisse der ersten Versuchsreihe aufgeführt. Zur Bestimmung der Bruchrate b wurde das Gutgewicht m_b der Korngröße $d_K < 315 \mu\text{m}$ ins Verhältnis zur gesamten aufgegebenen unzerstörten Gutmenge m_A gesetzt ($b = m_b/m_A$).

Für den ersten Versuch wurden 20,54 g UO_2 -TRISO-Partikel eingewogen, deren äußerste PyC-Schicht abgebrannt und deren mittlerer Durchmesser mit einem Prüfsieb zu $d_1 > 500 \mu\text{m}$ bestimmt worden war. Nach Versuchsende konnten die über den Zyklon Z1 und Z2 abgeschiedenen Rückstände gesiebt, ausgewogen und mit dem Periskop optisch ausgewertet werden. Die Maschenweite der Siebe war so gewählt, daß in der Siebfraktion $315 \leq d_1 \leq 500 \mu\text{m}$: Hüllbruch, $160 \leq d_1 \leq 315 \mu\text{m}$: unzerstörte UO_2 -Kerne, Hüllbruch $d_1 < 160$: Kernbruch, Hüllbruch zu erkennen sein müßten.

Für den ersten Versuch ergab die optische Auswertung der über Zyklon Z1 abgeschiedenen Menge folgendes Ergebnis:

Unter dem Siebrückstand mit $d_1 > 315 \mu\text{m}$ befanden sich überwiegend unzerstörte Partikeln (ca. 80 %) und nur einige wenige Hüllbruchstücke.

In der Siebfraktion $160 \leq d_1 \leq 315$ waren überwiegend Hüllbruch und einige SM-Kerne ($d_K = 200 \mu\text{m}$) zu erkennen. In der Siebfraktion $d_1 < 160 \mu\text{m}$ befand sich nur feinsten Hüll- und Kernbruch. Über den Zyklon Z2 wurde nur feinsten Hüllbruchstaub ausge tragen.

Im zweiten Versuch wurde die Wirbelbettanströmung verstärkt,

	Dimension	1. Versuchsreihe (Luftstrahlmühle)	
Versuchs-Nr.		1	2
Partikelart		UO ₂ -TRISO	UO ₂ -TRISO
Versuchsdauer	[min]	15	45
Versuchsmenge	[g]	20,54	40,51
mittlere Korngröße d _m	[µm]	> 500	> 500
Düsendurchmesser d ₁	[mm]	0,7	0,7
Luftdruck in der Düsenzuleitung P ₁	[bar abs]	5	6
Luftdurchsatz: Düse V ₁	[Nl/h]	1750	1650
Wirbelbettan- strömung V ₃	[Nl/h]	1000	3600
Gesamt V	[Nl/h]	2750	5250
Siebanalyse des Austrages über Zyklon Z2			
Korndurchmesser d ₁ > 315 µm	[g]	-	1,28
160 ≤ d ₁ ≤ 315 µm	[g]	-	0,05
d ₁ < 160 µm	[g]	-	0,07
Gesamtaustrag	[g]	0,35	1,40
Siebanalyse des Austrages über Zyklon Z1			
d ₁ > 315 µm	[g]	15,76	39,40
160 ≤ d ₁ ≤ 315	[g]	0,13	0,01
d ₁ < 160 µm	[g]	0,02	
Gesamtaustrag	[g]	15,91	41,18
Bruchrate b	[%]	2,43	0,35
Kontamination der Zellenabluft	[µCi/m ³]	9,3	10,4

Tab. 4: Ergebnisse der Versuche mit der Luftstrahlmühle
(Jet Grinding)

um eine bessere Trennung der Hüllbruchstücke von den Kernen und unzerstörten Partikeln zu erzielen. Die eingewogene Partikelmenge betrug 40,51 g.

Das Ergebnis zeigte, daß die am oberen Ende des Wirbelschachtes eingebaute Strömungsbremse die Luftgeschwindigkeit zu stark herabsetzt, um selbst bei maximalem Luftdurchsatz den gesamten Hüllbruch über den Zyklon Z2 auszutragen.

Die Zunahme des Gutaustrages über Z1 von 0,67 g gegenüber der Einwaage erklärte sich aus der Beimengung von Restgut des vorherigen Versuches. Die sehr niedrigen Bruchraten zeigten, wie schon in den Kaltversuchen mit unbestrahlten Partikeln nachgewiesen [7], daß das Aufbrechen der SiC-Beschichtung mit einer Luftstrahlmühle unter den dargestellten Versuchsbedingungen nicht durchführbar ist.

Aus diesem Grunde wurden alle weiteren Versuche mit einer Prallmühle durchgeführt.

4.2 Prallmühle

4.2.1 Beschreibung des Verfahrens

Im Unterschied zu der Strahlmühle werden in der Prallmühle die Partikeln aus dem Vorratsbehälter direkt in die Düsendruckleitung gefördert und hier von dem Trägermedium (Luft) mit hoher Geschwindigkeit in den Mahlraum transportiert, wo die TRISO-Beschichtungen der Partikeln beim Aufprall auf die Prallplatte aufbrechen und den SM-Kern freigeben (Abb. 6). Der Mahlraum, der auch als Sichtraum ausgelegt ist, wird gleichzeitig von unten angeströmt, so daß bei entsprechendem Luftdurchsatz der Hüllbruch aus dem Sichtrohr nach oben ausgetragen und über einen Zyklon aus dem Abluftstrom abgeschieden werden kann.

Die SM-Kerne und noch unzerstörten Partikeln werden über eine Abflußleitung, die unmittelbar über dem Anströmboden in das Sichtrohr mündet, abgezogen.

Abb. 7 zeigt das Fließbild zum Aufbrechen der TRISO-Beschichtungen mit der Prallmühle bzw. Partikelstrahlmühle [8].

4.2.2 Versuchsergebnisse mit Erläuterungen

In Tabelle 5 sind die Versuchsbedingungen und in Tabelle 6 die Ergebnisse der zweiten und dritten Versuchsreihe aufgeführt.

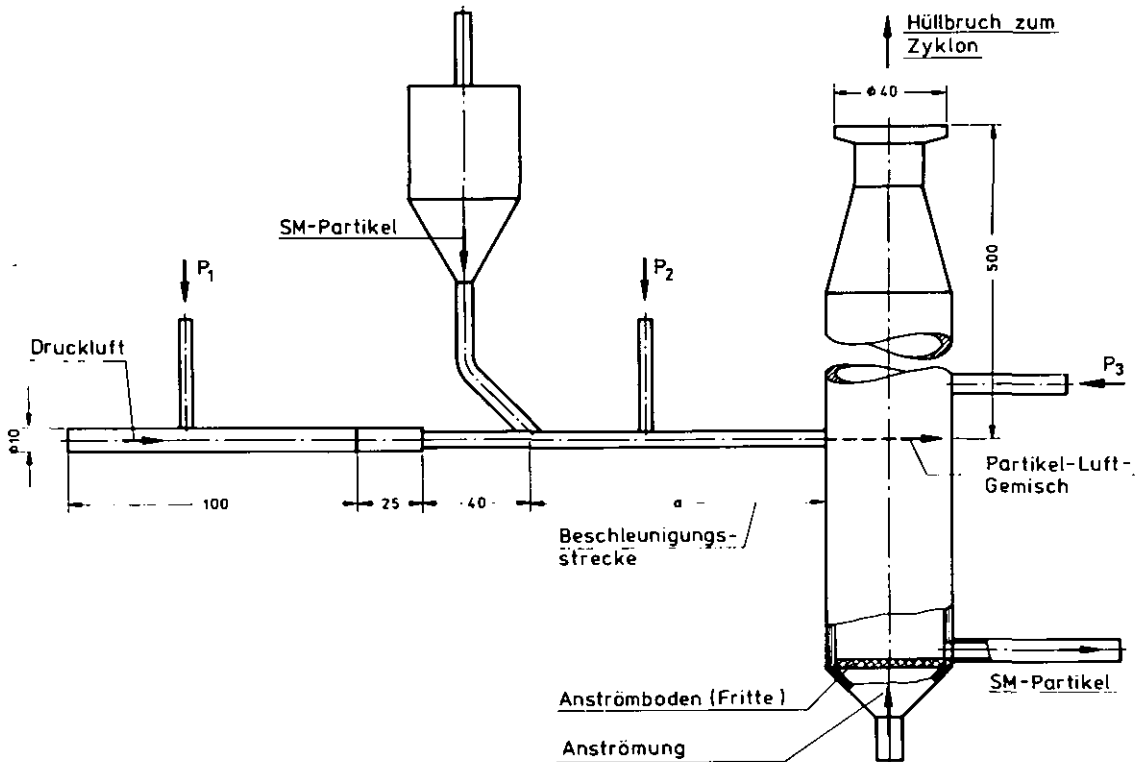


Abb. 6: Partikelstrahlmühle [8]

Gegenüber den Versuchen mit der Luftstrahlmühle (1. Versuchsreihe) zeigen die Ergebnisse der 2. Versuchsreihe in Tabelle 6 eine merkliche Steigerung der Bruchraten (5,1 %), was auch an der stärkeren Kontamination der Zellenabluft abzulesen ist ($80 \mu\text{Ci}/\text{m}^3$ gegenüber $10 \mu\text{Ci}$ aus Versuch Nr. 2).

Die Bruchraten konnten im Versuch Nr. 4 und 5 noch einmal auf 26 % durch Verringerung der Aufgabemengen gesteigert werden; d. h., die Geschwindigkeit des Treibmittels ist noch nicht hoch genug, um auf der relativ kurzen Beschleunigungsstrecke den Partikeln die notwendige Geschwindigkeitsenergie zu erteilen.

Versuchs-Nr.	Dimension	2. Versuchsreihe										3. Versuchsreihe		
		3	4	5	6.1	6.2	7.1	7.2	8.1	8.2	8.3			
Versuchsmenge Partikeln	[g]	40,52	20,21	16,06	10,0	5,67	9,8	5,55	9,61	2,04 ¹⁾	0,27 ²⁾			
Versuchsdauer	[min]	1	1	1	1									
mittlere Korngröße des Aufgabegutes d _m	[µm]	500	500	315-500	315-500	315-500	315-500	315-500	315-500	315-500	315-500			
Düsendurchmesser d	[mm]	4	4	4	4	4	4	4	4	4	4			
Luftdruck in der Düsenrohrleitung P ₁	[bar abs]	2	2	2	2	2	3	3	5	5	5			
P ₂	[bar abs]	1,3	1,3	1,3	1,2	1,2	1,4	1,4	1,8	1,8	1,8			
Luftdurchsatz Düsenrohrleitung V	[Nl/h]	6000	6000	6000	5566	5566	6887	6887	10000	10000	10000			
Ausflußgeschwindigkeit U des Partikeln-Luftgemisches nach [7]	[m/s]				115	115	156	156	207	207	207			
Kontamination der Zellenabluft	[µCi/m ³]	80	200	70					12000 ipm	4500 ipm	800 ipm			

Tab. 5: Versuchsbedingungen für die 2. und 3. Versuchsreihe zum Aufbrechen der SiC-Beschichtungen von UO₂-TRISO-Partikeln mit der Prallmühle (Partikelstrahlmühle)
¹⁾ Restgut aus Versuch 8.1, ²⁾ Restgut aus Versuch 8.2

	Dimension	2. Versuchsreihe								3. Versuchsreihe		
		3	4	5	6.1	6.2	7.1	7.2		8.1	8.2	8.3
Gesamtaustrag über Zyklon Z1	[g]	1,51	3,03	2,95	8,18	5,03	9,33	5,46		9,50	1,81	0,27
Klassenbreite $d_1 > 315 \mu\text{m}$	[g]		0,05	0,18	5,67	3,27	5,55	2,59		2,04	0,27	0,23
" $160 < d_1 < 315 \mu\text{m}$	[g]	1,51	2,98	2,77	2,51	1,76	3,78	2,87		7,46	1,55	0,04
" $d_1 < 160 \mu\text{m}$	[g]	-	-	-	-	-	-	-				
Gesamtaustrag über Zyklon Z2	[g]	39,17	16,09	12,76						siehe Tabelle 7		
Klassenbreite $d_1 > 315 \mu\text{m}$	[g]	38,58	16,01	11,36								
" $160 < d_1 < 315 \mu\text{m}$	[g]	0,53	0,08	1,4								
" $d_1 < 160 \mu\text{m}$	[g]	0,06	-	-								
Bruchrate b	[%]	5,1	18,7	26,0	25,1	31,04	38,67	51,7		77,6	85,3	85,2

Tab. 6: Ergebnisse der Siebanalysen und Bruchraten aus den Versuchen der 2. und 3. Versuchsreihe

Die Abbildungen 8 - 11 zeigen das Ergebnis der Siebanalyse aus den Versuchen 4 und 5. Abb. 12 gibt einen Blick in die Chemiezelle frei mit dem Versuchsaufbau für die Partikelstrahlmühle.

Zur Ermittlung der Partikelnaustrittsgeschwindigkeit aus der Strahldüse wurde nachträglich eine Druckmeßstelle in der Düsendruckleitung unmittelbar hinter der Partikelzuführung eingebaut. Die Ergebnisse zeigen, daß die Bruchrate nach zweimaligem Aufprall der abgebrannten UO_2 -TRISO-Partikeln bei gleichbleibendem Luftdurchsatz ansteigt (in Versuch 6.2 wurden die nach Ablauf des Versuches 6.1 noch unzerstört gebliebenen Partikeln ein zweites Mal verwendet).

Die Ausflußgeschwindigkeit u des Partikelnluftgemisches wurde nach folgender Gleichung berechnet [9]

$$u = \sqrt{2 \cdot g \cdot m \cdot \log \frac{P_2}{P_0}} \quad [\text{m/s}] \quad (9)$$

mit $g = 9,81 \text{ m/s}^2$ (Erdbeschleunigung)

$m = 8574$ bei isothermischer Verdichtung der angesaugten Luft vom Druck $P_0 = 1,013 \text{ bar}$ abs auf P_2 *physikalische Bedeutung von m ???*

P_0 = Umgebungsdruck

P_2 = Druck in der Düsenrohrleitung hinter der Partikelnaufgabe, maßgebend für die Berechnung von u

In den Versuchen 7.1 und 7.2 wurde der Luftdurchsatz von $\dot{V}_L = 5566 \text{ Nl/h}$ auf 6887 Nl/h erhöht. Nach Gl. 9 errechnet sich eine Ausflußgeschwindigkeit des Partikelnluftgemisches von $u = 156 \text{ m/s}$ gegenüber von $u = 115 \text{ m/s}$ in den vorherigen Versuchen. Dieser Zunahme des Luftdurchsatzes von ca. 20 % entspricht die Steigerung der Bruchrate um 8 % und zwar von 31 % (Versuch 6.2) auf 39 % (Versuch 7.1).

Nach dem zweimaligen Aufprall der noch unzerstörten Partikeln ergab sich auch in Versuch 7.2 eine erhebliche Verbesserung der Gesamtbruchrate um 13 %.

Die Versuche 8.1 - 8.3 (3. Versuchsreihe) wurden mit dem maximal möglichen Luftdurchsatz von $\dot{V}_L = 10000 \text{ Nl/h}$ gefahren, was einer Partikeln-Luftgemisch-Geschwindigkeit von $u = 207 \text{ m/s}$ entspricht.

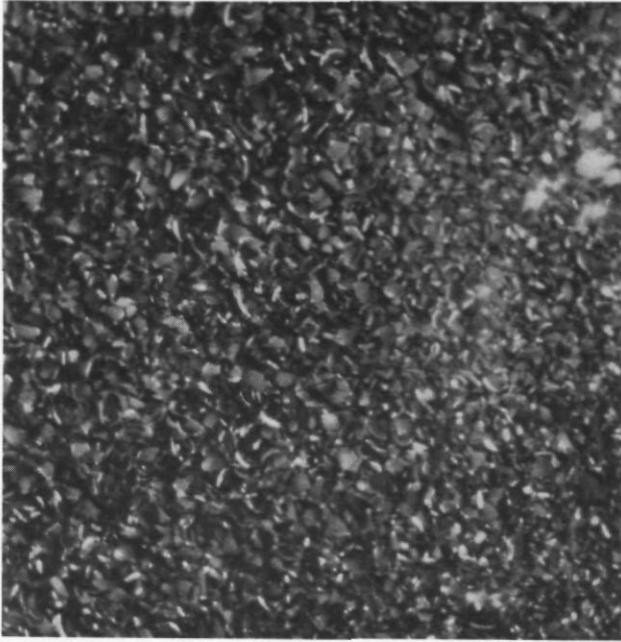


Abb. 8: Feiner Hüll- und Kernbruch der Klassenbreite $d_1 < 160 \mu\text{m}$ (30 x)

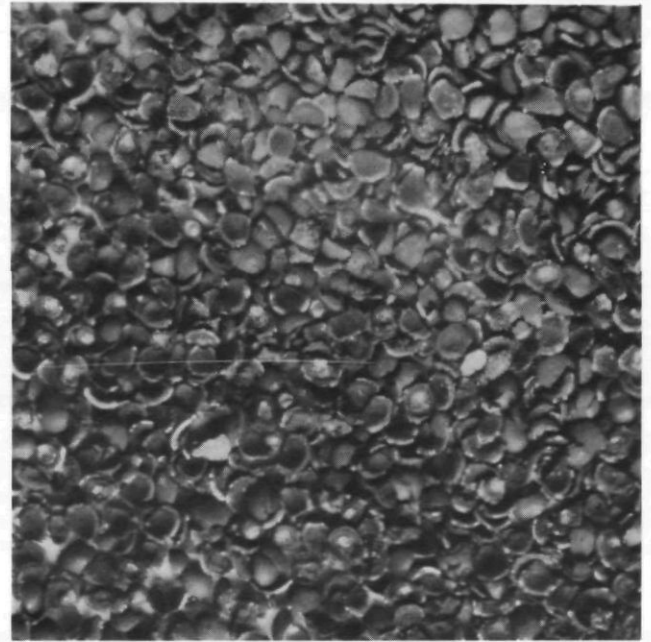


Abb. 9: Hüll- und Kernbruch sowie unzerstörte UO_2 -Kerne der Klassenbreite $160 \mu\text{m} < d_1 < 250 \mu\text{m}$ (30 x)

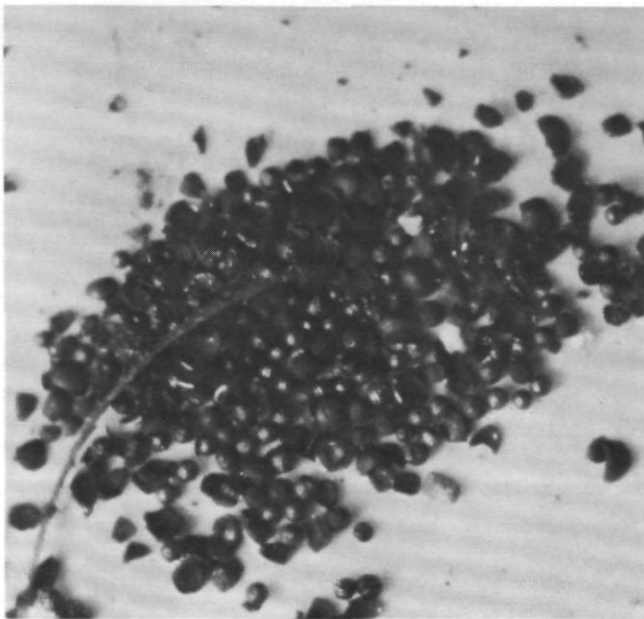


Abb. 10: Hüll- und Partikelbruch sowie ca. 50 % UO_2 -Kerne Klassenbreite $160 \mu\text{m} < d_1 < 250 \mu\text{m}$ (30 x)

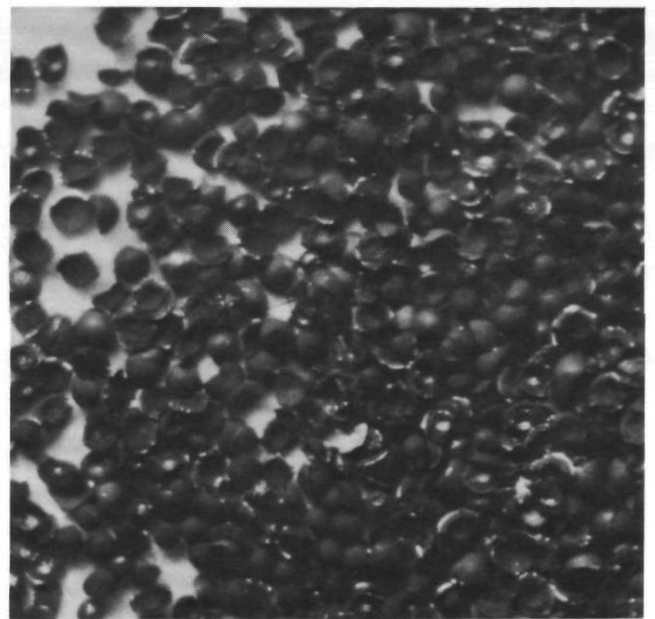


Abb. 11: Grober Schalen- und Partikelbruch der Kornklasse $250 \mu\text{m} < d_1 < 315 \mu\text{m}$ (30 x)

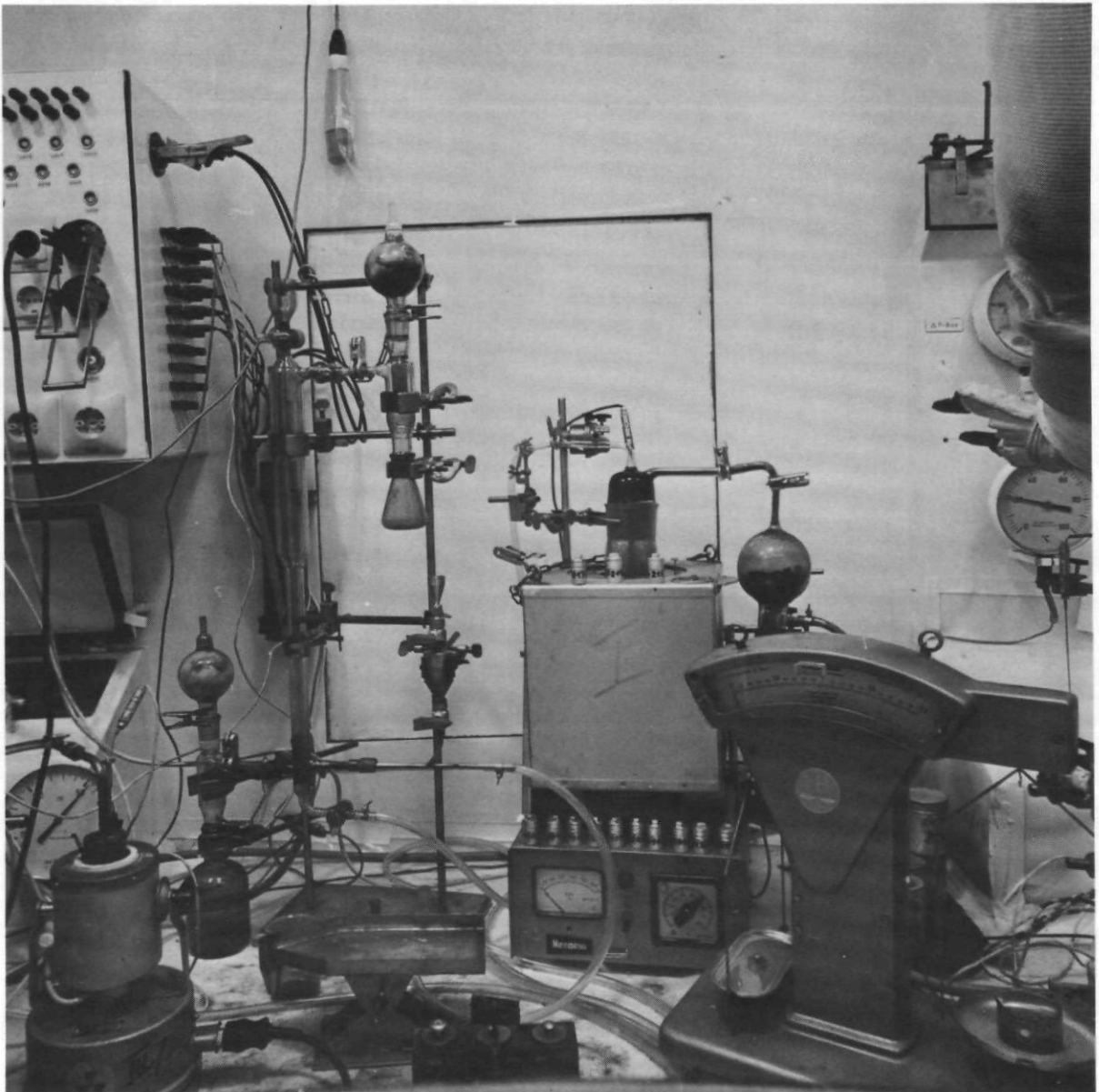


Abb. 12: Blick auf die Versuchsanordnung durch das Blei-
glasfenster der Heißen Zelle

Das nach Beendigung von Versuch 8.1 und 8.2 jeweils unzerstört gebliebene Gut der Korngröße $d_1 > 315 \mu\text{m}$ wurde in den Prallversuchen 8.2 und 8.3 ein zweites bzw. drittes Mal eingesetzt. Das Mengenverhältnis, gebildet aus dem Anteil der nach dem Versuch 8.3 übriggebliebenen unzerstörten Partikeln ($m = 0,04$ mit $d_1 > 315 \mu\text{m}$) und der anfangs aufgegebenen Menge ($m = 9,61 \text{ g}$) lieferte eine Gesamtbruchrate von 99 %.

Die Ergebnisse der Siebanalyse zu der 3. Versuchsreihe sind in Tabelle 7 aufgeführt.

Versuchs Nr.	Einwaage in g	Auswaage in g			Massendifferenz in [g] er- mittelt			Korrigierte Auswaage [g]		Bruchrate [%]	
		< 315 μ	> 315 μ	gesamt	gesamt	< 315 μ	> 315 μ	< 315 μ	> 315 μ	je Versuch.	gesamt
8.1.76	9,61	7,46	2,04	9,50	0,11	(0,0864) \approx 0,09	(0,0236) \approx 0,02	7,55	2,06	78,56	78,56
8.2.76	2,04	1,55	0,27	1,82	0,22	(0,187) \approx 0,19	(0,0326) \approx 0,03	1,74	0,30	85,29	96,67
8.3.76 (1.1.77)	0,27	0,23	0,04	0,27	-	-	-	0,23	0,04	85,19	99,06

Tab. 7: Siebanalyse der Prallversuche 8.1 - 8.3

5. GRAPHISCHE DARSTELLUNG DER VERSUCHSERGEBNISSE

Wegen der geringen Menge des bestrahlten Versuchsmaterial, das für die Versuche zur Verfügung stand, konnte nur eine beschränkte Anzahl Versuche durchgeführt werden. Dennoch wird in den folgenden Abbildungen versucht, einen Zusammenhang zwischen Bruchraten und Aufprallhäufigkeit, Ausflußgeschwindigkeit u der Partikeln aus dem Düsenrohr und Luftverbrauch \dot{V}_L herzustellen.

Abb. 13 gibt deutlich die Abhängigkeit der Bruchrate von der Aufprallhäufigkeit der UO_2 -TRISO-Partikeln bei konstantem Düsenluftvolumen von $\dot{V}_L = 10000 \text{ Nl/h}$ in den Versuchen Nr. 8.1 - 8.3 wieder.

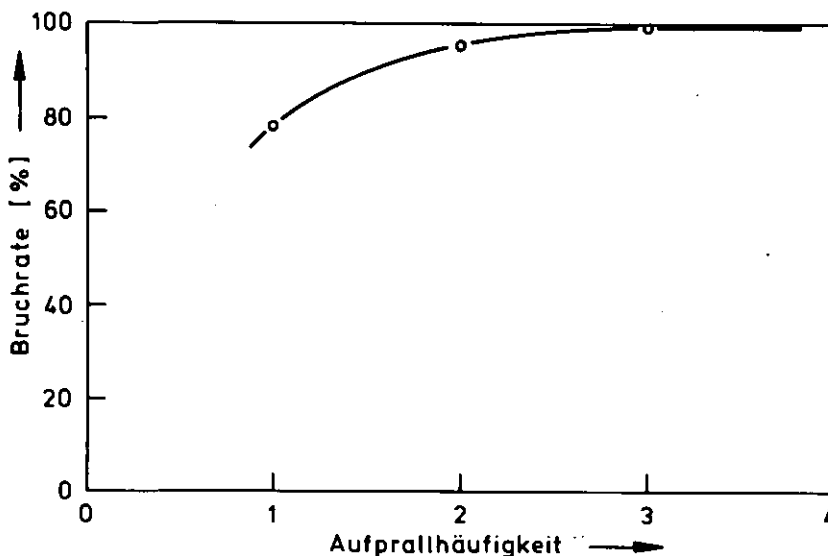


Abb. 13: Bruchrate [%] in Abhängigkeit von der Aufprallhäufigkeit bei konstantem Düsenluftverbrauch von $\dot{V}_L = 10000 \text{ Nl/h}$ (Versuche 8.1 - 8.3)

Auf den nächsten beiden Abbildungen ist der Zusammenhang zwischen Bruchrate und Ausflußgeschwindigkeit (Abb. 14) bzw. Luftdurchsatz (Abb. 15) dargestellt.

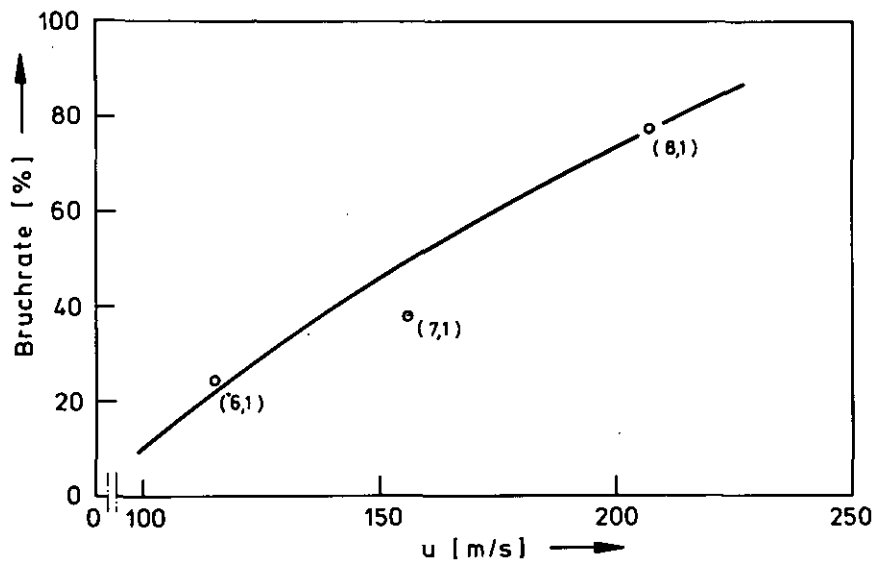


Abb. 14: Bruchrate in Abhängigkeit von der Ausflußgeschwindigkeit u des Partikelnluftgemisches (Versuche 6.1, 7.1, 8.1)

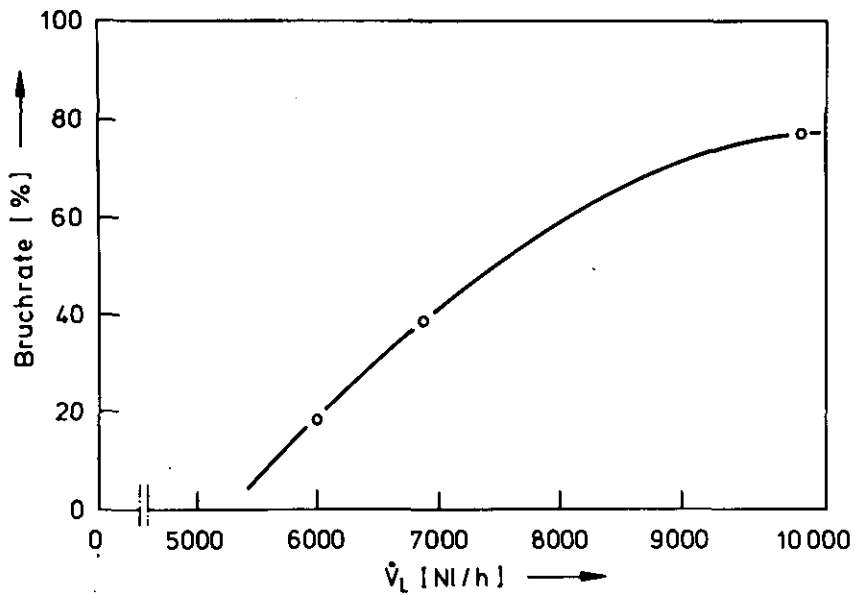


Abb. 15: Bruchrate in Abhängigkeit vom Düsenluftverbrauch \dot{V}_L (Versuche 4, 7.1, 8.1)

Ähnlich wie bei den Kaltversuchen mit den unbestrahlten UC_2 -TRISO-Partikeln [7] steigt die Bruchrate der bestrahlten UO_2 -TRISO-Partikeln (ohne äußerster PyC-Schicht) mit zunehmender Partikelgeschwindigkeit, allerdings in weit geringerem Maße wie dies Abb. 16 verdeutlicht.

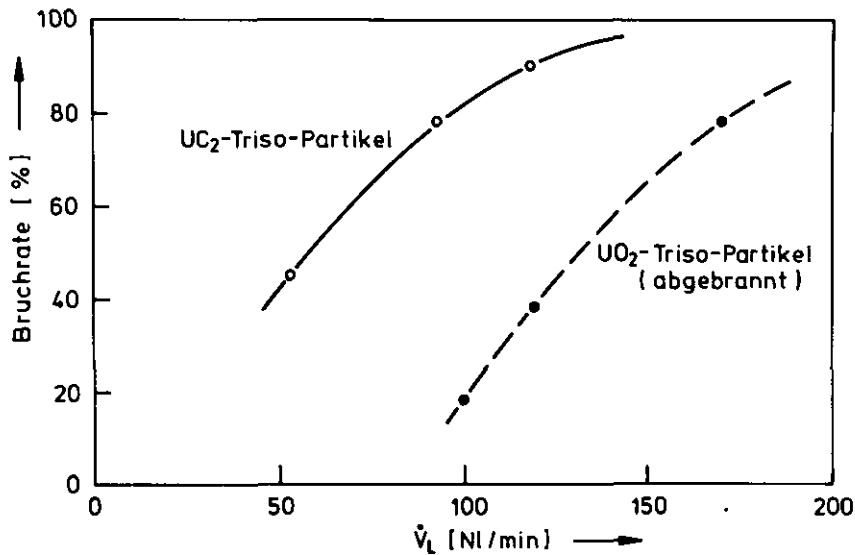


Abb. 16: Vergleich der Bruchraten (in Abhängigkeit vom Luftverbrauch \dot{V}_L) für unbestrahlte UC_2 -TRISO-Partikeln [7] und bestrahlte UO_2 -TRISO-Partikeln ohne äußerster PyC-Beschichtung (abgebrannt)

6. DISKUSSION DER ERGEBNISSE

Für den unterschiedlichen Verlauf der beiden Kurven in Abb. 16 lassen sich drei Begründungen anführen.

1. Gegenüber den Versuchen mit den unbestrahlten UC_2 -Partikeln wurde in der Chemiezelle eine Prallmühle mit einer kürzeren Beschleunigungsstrecke benutzt.
2. Für die heißen Versuche standen nur UO_2 -TRISO- und keine UC_2 -TRISO-Partikeln zur Verfügung.
3. Da die äußerste PyC-Schicht abgebrannt war, hatten die bestrahlten UO_2 -Partikeln eine um ca. 25 % geringere Masse als die unbestrahlten UC_2 -TRISO-Partikeln.

Die maximal mögliche Energieausnutzung bei einem geraden zentralen Stoß einer Brennstoffpartikel auf eine feste Prallwand läßt sich mit Hilfe der Gleichung (3)

$$E = m \cdot \frac{(v_{\text{rel}})^2}{2}$$

berechnen.

Bei gleicher Geschwindigkeit ist demnach die zur Zerkleinerung der Partikeln genutzte Verformungsenergie nur noch von der Masse abhängig.

Für die UC_2 -TRISO-Partikeln in [7] wurde eine mittlere Partikelmasse von $m_p = 224 \cdot 10^{-6}$ g bestimmt und eine Aufprallenergie von $E_{\text{UC}_2} = 7 \cdot 10^{-3}$ Joule ($v_{\text{rel}} = 250$ m/s) errechnet. Für die bestrahlten UO_2 -TRISO-Partikeln ohne äußerster PyC-Beschichtung mit einer mittleren Partikelmasse $m_{p_0} = 170 \cdot 10^{-6}$ g wird eine maximale Aufprallenergie von nur

$$E_{\text{UO}_2} = 3,64 \cdot 10^{-3} \text{ J } (v_{\text{rel}} = 207 \text{ m/s})$$

ermittelt, d. h., daß bei einer im Vergleich zu den Kaltversuchen um 50 % geringeren Aufprallenergie der bestrahlten UO_2 -TRISO-Partikeln die Bruchrate b erheblich niedriger ausfallen muß ($b = 78$ % bei $E_{\text{UO}_2} = 3,64 \cdot 10^{-3}$ J und $b > 90$ % bei $E_{\text{UC}_2} = 7 \cdot 10^{-3}$ Joule) bei einmaligem Aufprall der Partikeln auf die Behälterwand. Unter der Annahme, daß auch einer bestrahlten UO_2 -Partikel ohne äußerster PyC-Schicht eine Energie von $E = 7,1 \cdot 10^{-3}$ J zugeführt werden muß, um die SiC-Schicht aufzubrechen ohne dabei den UO_2 -Kern zu zerstören wäre eine Erhöhung der Geschwindigkeit von $v_{\text{rel}} = 207$ m/s auf $v_{\text{rel}} = 290$ m/s notwendig mit der die Partikeln auf die Prallwand auftreffen.

Bei den gegebenen Versuchsbedingungen in den Chemiezellen war eine Erhöhung der Geschwindigkeitsenergie der Partikeln nicht mehr möglich.

Zu dem Bruchverhalten der bestrahlten UO_2 -TRISO-Partikeln läßt sich allgemein feststellen, daß wesentlich mehr Kernbruch auftritt, als bei den Versuchen mit den unbestrahlten Partikeln. Deshalb liegt die Vermutung nahe, daß alle bisher im kalten Betrieb untersuchten Verfahren zum mechanischen Aufbrechen der SiC-Beschichtungen wie

- Jet-Grinding
- Rollenbrecher
- Diamantscheibenmühle
- Partikelstrahlmühle (Prallmühle)

im heißen Betrieb bezüglich des Kernbruchanteils wesentlich schlechtere Ergebnisse zeigen werden.

U. U. muß eine andere Art des Transportes der bestrahlten UO_2 - (bzw. UC_2 -) Kerne zur weiteren Behandlung (C-Nachverbrennung, Feed-Breed-Trennung, naßchemische Wiederaufarbeitung, Abb. 17 bzw. Abb. 18) gefunden werden, z. B. chargenweise. Denn es ist zu befürchten, daß die wenigen noch nicht zerbrochenen SM-Kerne auf dem Transport auseinanderfallen.

Zumindest ist bei der pneumatischen Transportart durch die sehr rauhe und porenartige Oberfläche der SM-Kerne (Abb. 19) ein starker Materialabrieb zu erwarten, was eine erhöhte Kontamination der Abluft und der Anlagenteile mit sich bringen würde.

Abb. 19 zeigt einen einzelnen UO_2 -Kern ($d_K = 300 \mu\text{m}$) eines bestrahlten (71 % fima) UO_2 -TRISO-Partikels [10]. Die Beschichtungen wurden durch vorsichtiges Zerdrücken von dem Kern entfernt. Dabei konnte auch beobachtet werden, daß ein gewisser Prozentsatz des Kernmaterials aus der Kernoberfläche herausgerissen wird und an der innersten PyC-Schicht (Buffer) haften bleibt.

Zum Vergleich mit der Oberflächengüte und Form bestrahlter UO_2 -Kerne (Abb. 19) sind in den Abbildungen 20 - 23 die Oberflächengüte und Form verschiedener unbestrahlter Kerne dargestellt.

Wie in [7] dargestellt, erbrachten die Prall-Versuche mit den ThO_2 -Kernen im kalten Betrieb die besten Ergebnisse, d. h. die höchsten Bruchraten, geringsten Kernbruch und wenig Hüllbruch im Feinkornbereich $d_1 < 60 \mu\text{m}$ wird mit den Partikeln erzielt, deren Kerne kugelförmig sind und eine sehr glatte Oberfläche aufweisen.

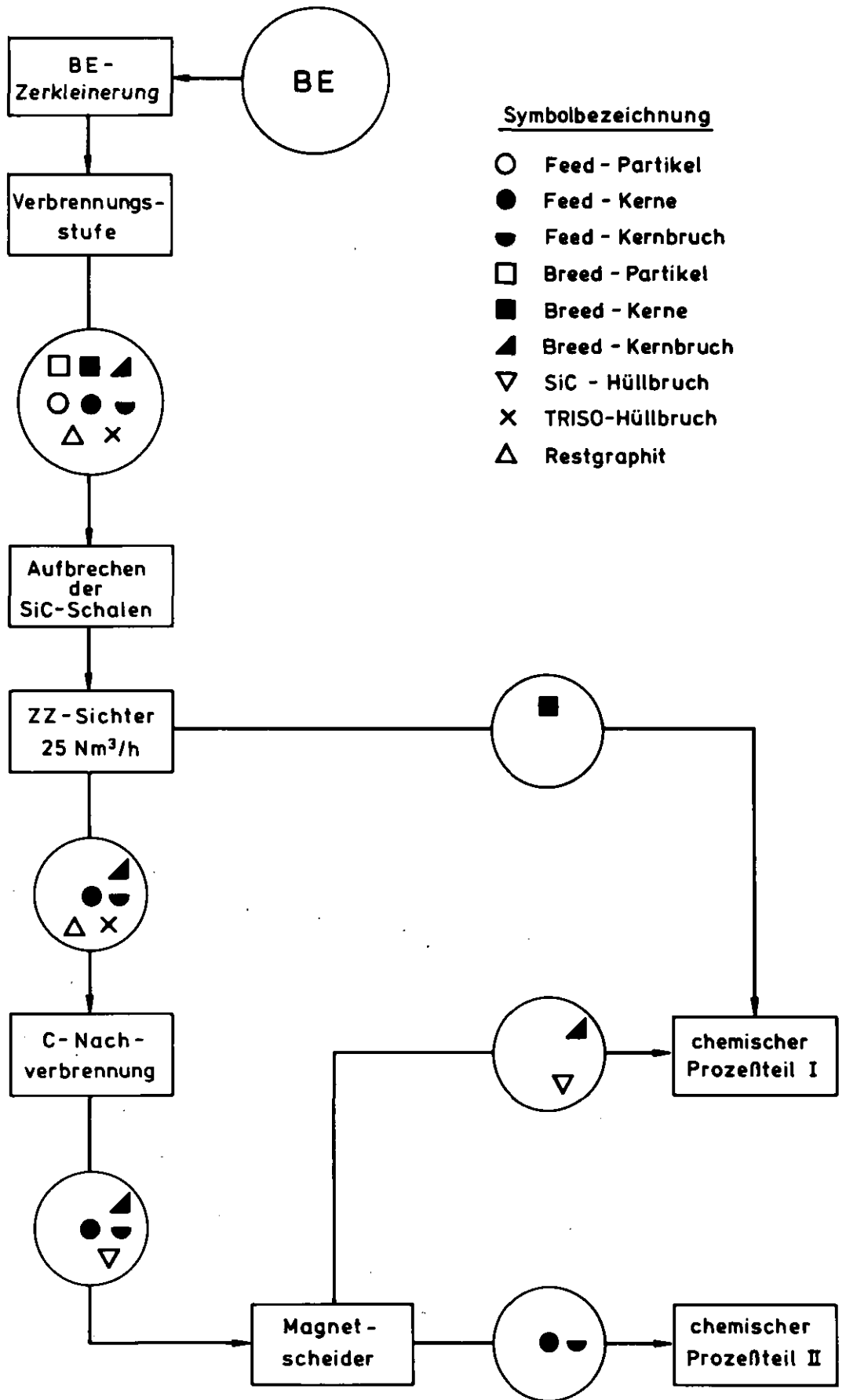


Abb. 18: Verfahrensschema des Head-Ends für (TRISO-Feed/TRISO-Breed)-Brennstoffkonzept mit Prallmühle zum Aufbrechen der SiC-Beschichtung und Feed-Breed-Trennung

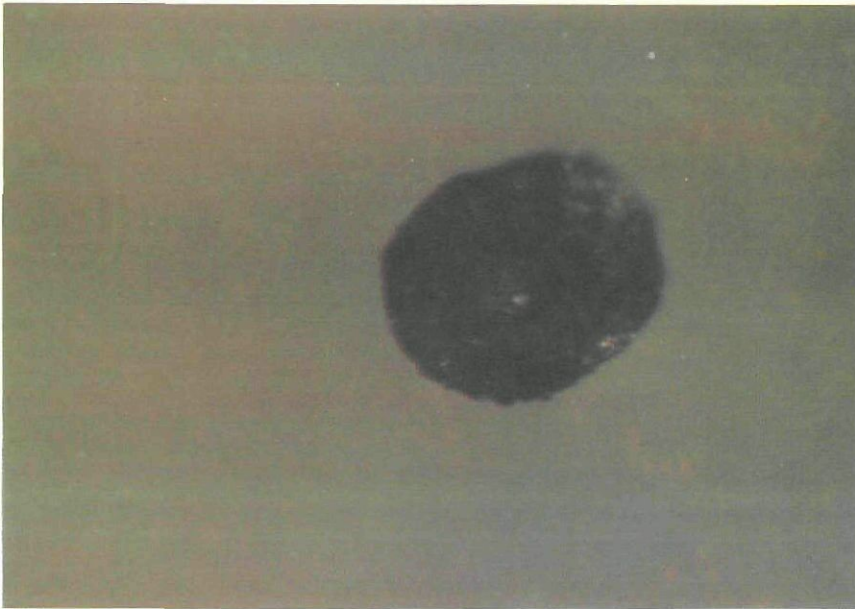


Abb. 19: Bestrahlter UO_2 -Kern der Sorte EO 561/567 t aus dem Bestrahlungsexperiment BR2-P19, 71 % fima [11]
($d_K = 300 \mu\text{m}$) (100x)

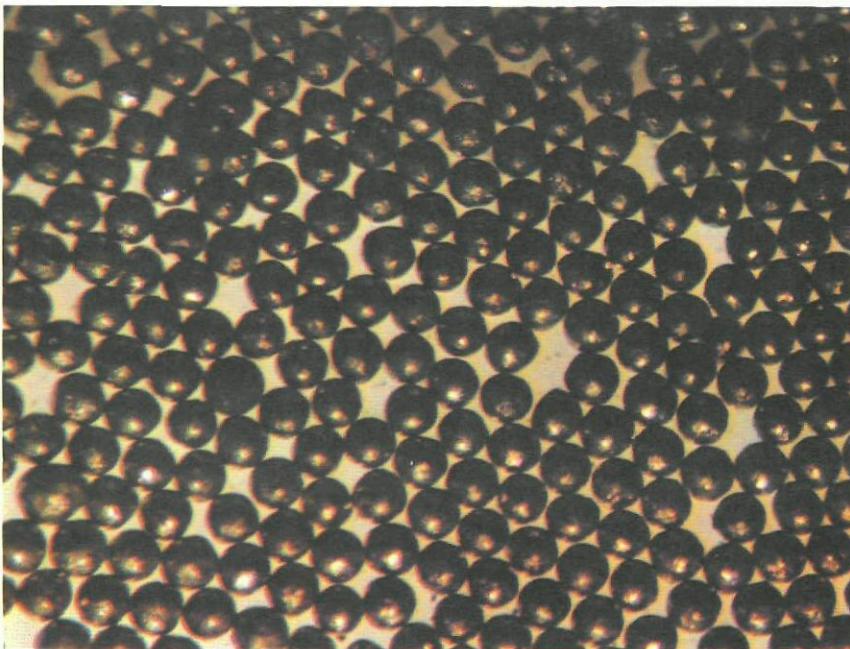


Abb. 20: UC_2 -Kerne unbestrahlt mit $d_K = 200 \mu\text{m}$ (30x)

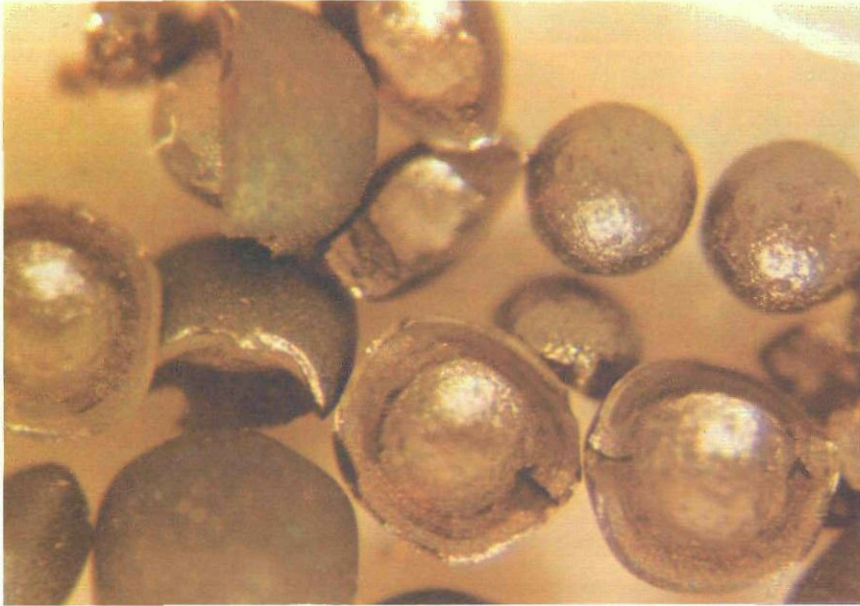


Abb. 21: Unbestrahlte UO_2 -TRISO-Partikeln (äußerste PyC-Schicht abgebrannt), UO_2 -Kerne, TRISO-Hüllbruch $d_K = 500 \mu\text{m}$ (30x)



Abb. 22: UO_2 -Kerne und Kernbruch (schwarz) $d_K = 200 \mu\text{m}$, unbestrahlt und ThO_2 -Kern und -Kernbruch $d_K = 500 \mu\text{m}$, unbestrahlt (30x)

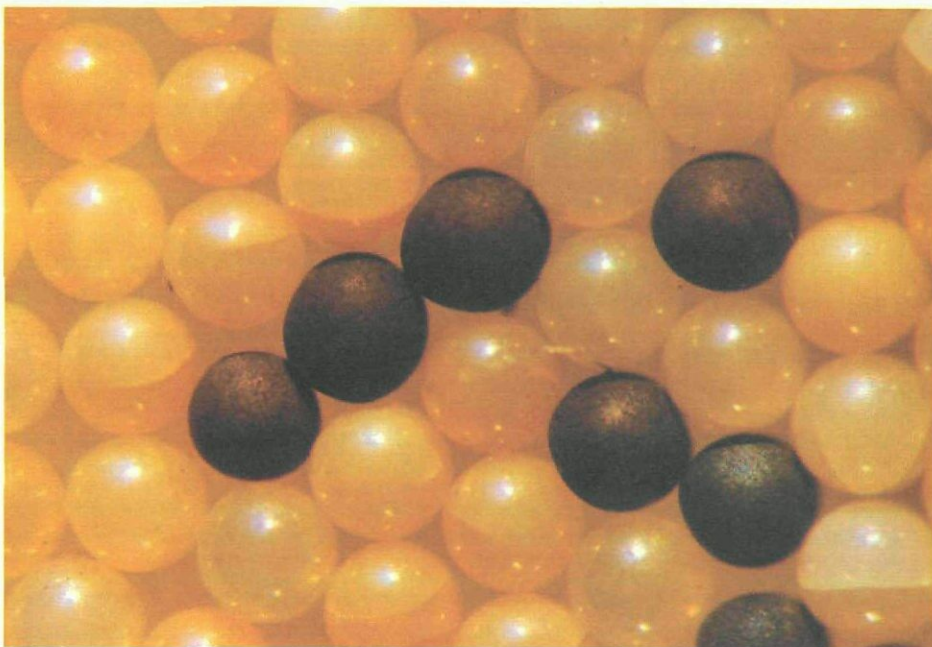


Abb. 23: Unbestrahlte ThO_2 -Kerne, $d_K = 500 \mu\text{m}$ (gelb) und unbestrahlte UC_2 -TRISO-Partikeln (dunkel) ohne äußerster PyC-Beschichtung abgebrannt, $d_{PO} = 500 \mu\text{m}$ (30x)

7. ZUSAMMENFASSUNG

Zur wirksameren Spaltproduktrückhaltung wurde bei den Feed-Partikeln eine zusätzliche Beschichtung aus SiC aufgebracht. In dem Head End der Wiederaufarbeitung hat das zur Folge, daß ein zusätzlicher Verfahrensschritt - die mechanische Zerkleinerung der Beschichtungen der Feed-Partikeln - notwendig wird, da das SiC chemisch inert ist.

Nachdem in den Versuchen mit unbestrahlten UC_2 -TRISO-Partikeln die prinzipielle Eignung der Prallmühle (Partikelstrahlmühle) zum Aufbrechen der SiC-Beschichtungen nachgewiesen wurde, setzte man ein ähnliches Zerkleinerungsgerät in den HZ ein, um die SiC-Beschichtung bestrahlter UO_2 -TRISO-Partikeln aufzubrechen, deren äußerste PyC-Schicht vorher in einem Muffelofen abgebrannt worden war.

Die Versuchsergebnisse zeigten, wie zu erwarten war, deutlich den Zusammenhang zwischen Bruchrate und Partikelnausflußge-

schwindigkeit bzw. Aufprallhäufigkeit. Allerdings wurden geringere Bruchraten von nur $b = 78 \%$ gegenüber $b = 90 \%$ bei den Versuchen mit unbestrahlten UC_2 -TRISO-Partikeln erzielt.

Die Gründe für die niedrigen Bruchraten sind in der

- um 25 % geringeren Partikelmasse,
- niedrigeren Ausflußgeschwindigkeit u des Partikeln-Luftgemisches,
- kürzere Beschleunigungsstrecke und
- in den den Heißzellenbetrieb berücksichtigenden konstruktiven Änderungen an der Versuchsanlage

zu suchen.

Die wichtigste Erkenntnis, die man aus den Prallversuchen zum Aufbrechen der bestrahlten UO_2 -TRISO-Partikeln und der optischen Auswertung ziehen kann, dürfte die Tatsache sein, daß die Bruchfestigkeit der UO_2 -Kerne nach der Bestrahlung nur noch sehr gering ist. Deshalb muß man damit rechnen, daß der größte Teil der Kerne bei diesem und anderen mechanischen Zerkleinerungsverfahren oder den noch folgenden Verfahrensschritten des Head-Ends auseinanderbricht und die Handhabung des z. T. sehr feinkörnigen UO_2 -(bzw. UC_2 -)Kernbruches äußerst problematisch werden dürfte.

↳ das Verfahren ist krit.

8. NOMENKLATUR

1. Verzeichnis der Abkürzungen

AVR	=	Arbeitsgemeinschaft Versuchsreaktor GmbH
BE	=	Brennelement
BISO	=	Zweifach-Beschichtung der Brennstoffpartikeln (2 PyC-Schichten unterschiedlicher Dichte) <u>B</u> inary <u>I</u> sotropic
Breed	=	Brutstoff
Feed	=	Spaltstoff
fifa	=	<u>f</u> issions per <u>i</u> nitial <u>f</u> issionable <u>a</u> toms
fima	=	<u>f</u> issions per <u>i</u> nitial <u>m</u> etal <u>a</u> toms
Head End	=	Eingangsstufe der Wiederaufarbeitung
HTR, THTR	=	Hochtemperaturreaktor <i>?? der wep nicht mal,</i>
ILTI-PyC	=	<u>I</u> nnner <u>L</u> ow <u>T</u> emperature <u>I</u> sotropic-PyC <i>was THTR heiss, oder doch?</i>
MEU	=	<u>M</u> edium- <u>E</u> nriched- <u>U</u> ranium
OLTI	=	<u>O</u> uter <u>L</u> ow <u>T</u> emperature <u>I</u> sotropic
PyC	=	Pyrokohlenstoff
SiC	=	Siliziumcarbid
TRISO	=	Dreifach-Beschichtung der Brennstoffpartikeln <i>{ auch niedrig, richtig!</i> (2 PyC-Schichten unterschiedlicher Dichte, 1 SiC-Schicht) <u>T</u> ernary <u>I</u> sotropic
WAA	=	Wiederaufarbeitungsanlage

2. Verzeichnis der Symbole

b	=	Bruchrate [%]
A	=	Abbrand ($A = 1 \hat{=} 100 \% \text{ fira}$)
d	=	Außendurchmesser der Beschichtungen (Korngröße) [μm]
d_m	=	mittlerer Partikelndurchmesser [μm]
g	=	Erdbeschleunigung (981 cm/s^2)
m	=	Masse [g]
\dot{m}	=	Massendurchsatz [kg/h]
p	=	Druck [bar]
S	=	Schichtdicke [μm]
T	=	Temperatur [K]
u	=	Geschwindigkeit [m/s] des Partikeln-Luftgemisches
v_{rel}	=	Geschwindigkeit [m/s] der Partikeln
V	=	Volumen [cm^3]
\dot{V}_L	=	Volumenstrom [m^3/h]
ρ	=	Dichte [g/cm^3]

3. Verzeichnis der Indizes

K	=	Kern
P	=	Partikel
P_o	=	Partikel ohne äußerster PyC-Schicht
1	=	Buffer-Schicht
2	=	1.PyC-Schicht
3	=	SiC-Schicht
4	=	2.PyC-Schicht

9. LITERATURVERZEICHNIS

- [1] Merz, E. Wiederaufarbeitung von Kern- und
Brutstoffen;
Interner Bericht KFA-ICT-IB-418/77 1977
- [2] Naefe, P. Auswirkungen des Brennstoffkonzeptes
Zimmer, E. auf den Brennstoffkreislauf des Hoch-
temperaturreaktors;
JÜL-1286 1976
- [3] Böhnert, R. Entwicklung eines Verfahrens zur Ver-
brennung des Graphits bestrahlter
Brennelemente in einer inertstofffreien
Wirbelschicht;
JÜL-1041-CT 1974
- [4] Merz, E. Wiederaufarbeitung thoriumhaltiger
Kernbrennstoffe;
Jahrestätigkeitsbericht für den Zeit-
raum 1.7.75 - 30.6.76, KFA-Jülich,
Institut für Chemische Technologie 1976
- [5] Schubert, H. Aufbereitung fester mineralischer Roh-
stoffe, Band 1, Leipzig 1968, Deutscher
Verlag für Grundstoffindustrie
- [6] Rumpf, H. Beanspruchungstheorie der Prallzerkleinerung
Chemie-Ing.-Techn. 31. Jahrgang 1959, Nr.5
- [7] Hartmann, K. Untersuchungen zur Zerstörung SiC-umhüllter
Kernbrennstoffpartikeln für eine anschließen-
de Wiederaufarbeitung, Dipl. Arbeit 1975,
Institut f. Chem. Technologie, KFA-Jülich
- [8] Böhnert, R. Patentschrift 26 17067 1978
Hartmann, K.
- [9] Karg, R. Die Preßluft- und Sandverhältnisse beim Be-
trieb von Sandstrahlgebläsen, Zeitschrift
für die gesamte Gießereipraxis "Eisen Zei-
tung", Jahrgang 46, Nr. 35, 34; Berlin 1925"

- [10] Hartmann, K. Entwicklung eines trocken-mechanischen
Verfahrens zur Trennung einer Mischung
zweier ungleichartiger Kornkollektive
aus Abbrand- und Brutpartikeln für Hoch-
temperaturreaktoren, Jül-1592,
KFA-Jülich 1979

- [11] Interner Bericht ZBB-IB-40/76
KFA-Jülich 1976

- [12] Förthmann, R. Technische Notiz
Blass, G. IRW-TN-63/74
KFA-Jülich 1974

- [13] Teuchert, E. Flexibilität und Urannutzung des
Schulten, R. Kugelhaufenreaktors
Jahresbericht 1978/79 der KFA-Jülich

Die vorliegende Arbeit wurde in den Chemiezellen des Instituts für Chemische Technologie der Kernforschungsanlage Jülich durchgeführt. Dem Institutsleiter, Herrn Prof. Dr. E. Merz herzlichen Dank für die Förderung der Arbeit.

Dank an Herrn Kawalis für die Unterstützung bei der Durchführung der Versuche in den heißen Zellen, ebenso an Frau Göttinger für die Erstellung der Zeichnungen und Diagramme und Frl. Hanke für die Geduld, die sie bei der Reinschrift der Arbeit aufbrachte.